

(19) 世界知的所有権機関
国際事務局



(43) 国際公開日
2002 年 9 月 19 日 (19.09.2002)

PCT

(10) 国際公開番号
WO 02/073252 A1

BEST AVAILABLE COPY

- (51) 国際特許分類: G02B 5/30, G02F 1/13363, C08L 1/10, C08J 5/18 // C08L 1:10
- (21) 国際出願番号: PCT/JP02/02411
- (22) 国際出願日: 2002 年 3 月 14 日 (14.03.2002)
- (25) 国際出願の言語: 日本語
- (26) 国際公開の言語: 日本語
- (30) 優先権データ:
特願2001-72391 2001 年 3 月 14 日 (14.03.2001) JP
特願2001-72392 2001 年 3 月 14 日 (14.03.2001) JP
特願2001-249273 2001 年 8 月 20 日 (20.08.2001) JP
- (71) 出願人 (米国を除く全ての指定国について): 富士写真フイルム株式会社 (FUJI PHOTO FILM CO., LTD.) [JP/JP]; 〒250-0123 神奈川県 南足柄市中沼 2 1 0 番地 Kanagawa (JP).
- (72) 発明者; および
(75) 発明者/出願人 (米国についてのみ): 竹内 寛 (TAKEUCHI, Hiroshi) [JP/JP]; 〒250-0123 神奈川県 南足柄市中沼 2 1 0 番地 富士写真フイルム株式会社内 Kanagawa (JP). 佐多 博暁 (SATA, Hiroaki) [JP/JP]; 〒250-0123 神奈川県 南足柄市中沼 2 1 0 番地 富士写真フイルム株式会社内 Kanagawa (JP). 川西 弘之 (KAWANISHI, Hiroyuki) [JP/JP]; 〒250-0123 神奈川県 南足柄市中沼 2 1 0 番地 富士写真フイルム株式会社内 Kanagawa (JP). 藤井 隆満 (FUJII, Takamichi) [JP/JP]; 〒250-0123 神奈川県 南足柄市中沼 2 1 0 番地 富士写真フイルム株式会社内 Kanagawa (JP).
- (74) 代理人: 柳川 泰男 (YANAGAWA, Yasuo); 〒160-0004 東京都 新宿区 四谷 2-1 4 ミツヤ四谷ビル 8 階 Tokyo (JP).
- (81) 指定国 (国内): AE, AG, AL, AM, AT, AU, AZ, BA, BB, BG, BR, BY, BZ, CA, CH, CN, CO, CR, CU, CZ, DE, DK, DM, DZ, EC, EE, ES, FI, GB, GD, GE, GH, GM, HR, HU, ID, IL, IN, IS, KE, KG, KP, KR, KZ, LC, LK, LR, LS, LT,

[続葉有]

(54) Title: PHASE DIFFERENCE PLATE COMPRISING POLYMER FILM CONTAINING COMPOUND HAVING ROD-SHAPED MOLECULAR STRUCTURE

(54) 発明の名称: 棒状化合物を含むポリマーフィルムからなる位相差板

(57) Abstract: A phase difference plate which comprises one sheet of polymer film containing a compound having a rod-shaped molecular structure and exhibiting a maximum absorption wave length (λ_{\max}) of less than 250 nm in an ultraviolet spectrum of its solution and exhibits a retardation value as measured at a wave length of 450 nm (Re 450) of 60 to 135 nm and a retardation value as measured at a wave length of 590 nm (Re 590) of 100 to 170 nm, wherein the relationship: $\text{Re } 590 - \text{Re } 450 \geq 2 \text{ nm}$ is satisfied. The phase difference plate functions as a $\lambda/4$ plate.

(57) 要約:

一枚のポリマーフィルムから位相差板を構成する。位相差板は、波長 450 nm で測定したレターデーション値 (Re 450) が 60 乃至 135 nm であり、波長 590 nm で測定したレターデーション値 (Re 590) が 100 乃至 170 nm であり、 $\text{Re } 590 - \text{Re } 450 \geq 2 \text{ nm}$ の関係を満足し、 $\lambda/4$ 板として機能する。ポリマーフィルムは、溶液の紫外線吸収スペクトルにおいて最大吸収波長 (λ_{\max}) が 250 nm より短波長である棒状化合物を含む。

WO 02/073252 A1



LU, LV, MA, MD, MG, MK, MN, MW, MX, MZ, NO, NZ,
OM, PH, PL, PT, RO, RU, SD, SE, SG, SI, SK, SL, TJ, TM,
TN, TR, TT, TZ, UA, UG, US, UZ, VN, YU, ZA, ZM, ZW.

- (84) 指定国 (広域): ARIPO 特許 (GH, GM, KE, LS, MW,
MZ, SD, SL, SZ, TZ, UG, ZM, ZW), ユーラシア特許
(AM, AZ, BY, KG, KZ, MD, RU, TJ, TM), ヨーロッパ特
許 (AT, BE, CH, CY, DE, DK, ES, FI, FR, GB, GR, IE, IT,
LU, MC, NL, PT, SE, TR), OAPI 特許 (BF, BJ, CF, CG,
CI, CM, GA, GN, GQ, GW, ML, MR, NE, SN, TD, TG).

添付公開書類:

- 国際調査報告書
- 請求の範囲の補正の期限前の公開であり、補正書受領の際には再公開される。

2文字コード及び他の略語については、定期発行される各PCTガゼットの巻頭に掲載されている「コードと略語のガイダンスノート」を参照。

明 細 書

棒状化合物を含むポリマーフィルムからなる位相差板

[発明の分野]

本発明は、棒状化合物を含むポリマーフィルムからなる $\lambda/4$ 板として機能する位相差板に関する。

さらに本発明は、 $\lambda/2$ 板として機能する位相差板、 $\lambda/4$ を用いた円偏光板、円偏光板を用いた反射型液晶表示装置、 $\lambda/4$ を用いたタッチパネル、そして、タッチパネルを用いた反射型液晶表示装置にも関する。

さらに本発明は、棒状化合物を含むセルロースエステルフィルムにも関する。

[発明の背景]

$\lambda/4$ 板および $\lambda/2$ 板は、反射防止膜や液晶表示装置に関連する多くの用途を有しており、すでに実際に使用されている。しかし、 $\lambda/4$ 板あるいは $\lambda/2$ 板と称していても、ある特定の波長で $\lambda/4$ や $\lambda/2$ を達成しているものが大部分であった。

特開平5-27118号および同5-27119号の各公報には、レターデーションが大きい複屈折性フィルムと、レターデーションが小さい複屈折性フィルムとを、それらの光軸が直交するように積層させた位相差板が開示されている。二枚のフィルムのレターデーションの差が可視光域の全体にわたり $\lambda/4$ であれば、位相差板は理論的には、可視光域の全体にわたり $\lambda/4$ 板として機能する。

特開平10-68816号公報に、特定波長において $\lambda/4$ となっているポリマーフィルムと、それと同一材料からなり同じ波長において $\lambda/2$ となっているポリマーフィルムとを積層させて、広い波長領域で $\lambda/4$ が得られる位相差板が開示されている。

特開平10-90521号公報にも、二枚のポリマーフィルムを積層することにより広い波長領域で $\lambda/4$ を達成できる位相差板が開示されている。

以上のポリマーフィルムとしては、ポリカーボネートのような合成ポリマーの

延伸フィルムが使用されていた。

特開 2000-137116 号公報には、セルロースエステルフィルムを延伸することによって、広い波長領域において $\lambda/4$ を達成できることが開示されている。

WO 00/65384 号明細書には、セルロースアセテートフィルムに芳香族化合物（レターデーション上昇剤）を添加することによって、広い波長領域において $\lambda/4$ を達成できることが開示されている。

[発明の要旨]

セルロースエステルフィルムを延伸して、 $\lambda/4$ のような目標とする光学特性を得る方法では、目標値によってはフィルム破断領域近くまで延伸する必要がある場合がある。

一方、レターデーション上昇剤を使用すると、短波長領域でのレターデーションが目標値からずれやすいとの問題がある。

本発明の目的は、ポリマーフィルムからなる位相差板を改良し、広い波長領域で $\lambda/4$ または $\lambda/2$ を達成することである。

別の本発明の目的は、広い波長域で円偏光を達成することである。

また別の本発明の目的は、タッチパネルを通して表示される画像の品質を改善することである。

さらに別の本発明の目的は、円偏光板またはタッチパネルを用いる反射型液晶表示装置の画質を改善することである。

さらにまた別の本発明の目的は、位相差板に用いるセルロースエステルフィルムの耐久性を改善することである。

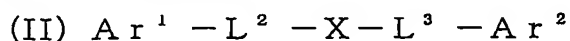
本発明は、溶液の紫外線吸収スペクトルにおいて最大吸収波長 (λ_{\max}) が 250 nm より短波長である棒状化合物を含み、波長 450 nm で測定したレターデーション値 (Re_{450}) が 60 乃至 135 nm であり、波長 590 nm で測定したレターデーション値 (Re_{590}) が 1.00 乃至 170 nm であり、 $Re_{590} - Re_{450} \geq 2 \text{ nm}$ の関係を満足する一枚のポリマーフィルムからなる位相差板を提供する。

また本発明は、溶液の紫外線吸収スペクトルにおいて最大吸収波長 (λ_{\max}) が 250 nm より短波長である棒状化合物を含み、波長 450 nm で測定したレターデーション値 (Re_{450}) が 120 乃至 270 nm であり、波長 590 nm で測定したレターデーション値 (Re_{590}) が 200 乃至 340 nm であり、 $Re_{590} - Re_{450} \geq 2 \text{ nm}$ の関係を満足する一枚のポリマーフィルムからなる位相差板を提供する。

さらに本発明は、溶液の紫外線吸収スペクトルにおいて最大吸収波長 (λ_{\max}) が 250 nm より短波長である棒状化合物を含み、波長 450 nm で測定したレターデーション値 (Re_{450}) が 60 乃至 135 nm であり、波長 590 nm で測定したレターデーション値 (Re_{590}) が 100 乃至 170 nm であり、 $Re_{590} - Re_{450} \geq 2 \text{ nm}$ の関係を満足する一枚のポリマーフィルムからなる位相差板と偏光膜とが、位相差板の面内の遅相軸と偏光膜の偏光軸との角度が実質的に 45° になるように積層されている円偏光板を提供する。

さらにまた本発明は、少なくとも片面に透明導電膜が設けられた 2 枚の透明導電性基板が、透明導電膜同士が対向するように配置され、少なくとも一方の透明導電性基板が $\lambda/4$ 板であるか、あるいは少なくとも一方の透明導電性基板の表面に $\lambda/4$ 板が積層されているタッチパネルであって、 $\lambda/4$ 板が、波長 450 nm で測定したレターデーション値 (Re_{450}) が 60 乃至 135 nm であり、かつ波長 590 nm で測定したレターデーション値 (Re_{590}) が 100 乃至 170 nm であり、 $Re_{590} - Re_{450} \geq 2 \text{ nm}$ の関係を満足し、さらに溶液の紫外線吸収スペクトルにおいて最大吸収波長 (λ_{\max}) が 250 nm より短波長である棒状化合物を含む一枚のポリマーフィルムからなることを特徴とするタッチパネルを提供する。

そして、本発明は、下記式 (II) で表される化合物を含むセルロースエステルフィルムも提供する：



[式中、 Ar^1 および Ar^2 は、それぞれ独立に、芳香族基であり； L^2 および L^3 は、それぞれ独立に、アルキレン基、 $-\text{O}-$ 、 $-\text{CO}-$ およびそれらの組み合わせからなる群より選ばれる二価の連結基であり；そして、 X は、1, 4-シ

クロヘキシレン、ビニレンまたはエチニレンである]。

本発明者が研究を進めた結果、溶液の紫外線吸収スペクトルにおいて最大吸収波長 (λ_{\max}) が 250 nm より短波長である棒状化合物を、レターデーション上昇剤としてポリマーフィルムに添加すると、短波長領域でのレターデーションを適切に調整できることが判明した。すなわち、本発明者は、耐久性に優れ、かつ広い波長領域で $\lambda/4$ または $\lambda/2$ を達成する位相差板を、一枚のポリマーフィルムで構成することに成功した。

一枚のポリマーフィルムからなる $\lambda/4$ 板は、円偏光板、タッチパネルあるいは円偏光板またはタッチパネルを用いる反射型液晶表示装置に、特に有利に用いることができる。

[図面の簡単な説明]

図 1 は、円偏光板を用いる反射型液晶表示装置の基本的な構成を示す模式図である。

図 2 は、タッチパネルを用いる反射型液晶表示装置の基本的な構成を示す模式図である。

図 3 は、タッチパネルを用いる反射型液晶表示装置の別の基本的な構成を示す模式図である

[発明の詳細な説明]

(フィルムのレターデーション)

ポリマーフィルムを $\lambda/4$ 板として使用する場合は、波長 450 nm で測定したレターデーション値 ($Re\ 450$) が 60 乃至 135 nm であり、かつ波長 590 nm で測定したレターデーション値 ($Re\ 590$) が 100 乃至 170 nm であり、そして、 $Re\ 590 - Re\ 450 \geq 2\text{ nm}$ の関係を満足する。 $Re\ 590 - Re\ 450 \geq 5\text{ nm}$ であることがさらに好ましく、 $Re\ 590 - Re\ 450 \geq 10\text{ nm}$ であることが最も好ましい。

波長 450 nm で測定したレターデーション値 ($Re\ 450$) が 108 乃至 120 nm であり、波長 550 nm で測定したレターデーション値 ($Re\ 550$)

が125乃至142nmであり、波長590nmで測定したレターデーション値 (Re590) が130乃至152nmであり、そして、 $Re590 - Re550 \geq 2\text{nm}$ の関係を満足することが好ましい。 $Re590 - Re550 \geq 5\text{nm}$ であることがさらに好ましく、 $Re590 - Re550 \geq 10\text{nm}$ であることが最も好ましい。また、 $Re550 - Re450 \geq 10\text{nm}$ であることも好ましい。

ポリマーフィルムを $\lambda/2$ 板として使用する場合は、波長450nmで測定したレターデーション値 (Re450) が120乃至270nmであり、かつ波長590nmで測定したレターデーション値 (Re590) が200乃至340nmであり、そして、 $Re590 - Re450 \geq 4\text{nm}$ の関係を満足する。 $Re590 - Re450 \geq 10\text{nm}$ であることがさらに好ましく、 $Re590 - Re450 \geq 20\text{nm}$ であることが最も好ましい。

波長450nmで測定したレターデーション値 (Re450) が216乃至240nmであり、波長550nmで測定したレターデーション値 (Re550) が250乃至284nmであり、波長590nmで測定したレターデーション値 (Re590) が260乃至304nmであり、そして、 $Re590 - Re550 \geq 4\text{nm}$ の関係を満足することが好ましい。また $Re590 - Re550 \geq 10\text{nm}$ であることがさらに好ましく、 $Re590 - Re550 \geq 20\text{nm}$ であることが最も好ましい。また、 $Re550 - Re450 \geq 20\text{nm}$ であることも好ましい。

レターデーション値 (Re) は、下記式に従って算出する。

$$\text{レターデーション値 (Re)} = (n_x - n_y) \times d$$

式中、 n_x は、位相差板の面内の遅相軸方向の屈折率 (面内の最大屈折率) であり； n_y は、位相差板の面内の遅相軸に垂直な方向の屈折率であり；そして、 d は、位相差板の厚さ (nm) である。

本発明に用いられるポリマーフィルムは1枚で下記式を満足する。

$$1 \leq (n_x - n_z) / (n_x - n_y) \leq 2$$

式中、 n_x は、位相差板の面内の遅相軸方向の屈折率であり； n_y は、位相差板の面内の遅相軸に垂直な方向の屈折率であり；そして、 n_z は、厚み方向の屈

折率である。

以上のような光学的性質を有するポリマーフィルムは、以下に述べる材料と方法により製造することができる。

(フィルムのポリマー)

光透過率が80%以上であるポリマーフィルムを用いることが好ましい。フィルムを構成するポリマーの例には、セルロースエステル(例、セルロースアセテート、セルロースジアセテート)、ノルボルネン系ポリマー、ポリメチルメタクリレートが含まれる。市販のポリマー(ノルボルネン系ポリマーでは、アトソン、ゼオネックス)を用いてもよい。セルロースエステルが好ましく、セルロースの低級脂肪酸エステルがさらに好ましい。低級脂肪酸とは、炭素原子数が6以下の脂肪酸を意味する。炭素原子数は、2(セルロースアセテート)、3(セルロースプロピオネート)または4(セルロースブチレート)であることが好ましい。セルロースアセテートが特に好ましい。セルロースアセテートプロピオネートやセルロースアセテートブチレートのような混合脂肪酸エステルを用いてもよい。

また、従来知られているポリカーボネートやポリスルホンのような複屈折の発現しやすいポリマーであってもWO 00/26705号明細書に記載の分子を修飾することで該発現性を低下させたものを用いることもできる。

ポリマーフィルムとしては、酢化度が55.0乃至62.5%であるセルロースアセテートを使用することが好ましい。特に酢化度が57.0乃至62.0%であることが好ましい。

酢化度とは、セルロース単位質量当たりの結合酢酸量を意味する。酢化度は、ASTM: D-817-91(セルロースアセテート等の試験法)におけるアセチル化度の測定および計算に従う。

セルロースエステルの粘度平均重合度(DP)は、250以上であることが好ましく、290以上であることがさらに好ましい。

また、本発明に使用するセルロースエステルは、ゲルパーミエーションクロマトグラフィーによる M_w/M_n (M_w は質量平均分子量、 M_n は数平均分子量)

の分子量分布が狭いことが好ましい。具体的な M_w/M_n の値としては、1.0乃至1.7であることが好ましく、1.3乃至1.65であることがさらに好ましく、1.4乃至1.6であることが最も好ましい。

セルロースエステルでは、セルロースの2位、3位、6位の水酸基が全体の置換度の1/3づつに均等に分配されるわけではなく、6位水酸基の置換度が小さくなる傾向がある。本発明ではセルロースの6位水酸基の置換度が、2位、3位と同程度または多い方が好ましい。

2位、3位、6位の置換度の合計に対する6位置換度の割合は、30乃至40%であることが好ましく、31%以上であることがより好ましく、32%以上であることがさらに好ましい。また、6位置換度は、0.88以上であることが好ましい。

セルロースの6位水酸基は、アセチル基以外に炭素数3以上のアシル基（例、プロピオニル、ブチリル、バレロイル、ベンゾイル、アクリロイル）で置換されていてもよい。各位置の置換度の測定は、NMRによって求める事ができる。

6位水酸基の置換度が高いセルロースエステルは、特開平11-5851号公報の段落番号0043～0044に記載の合成例1、段落番号0048～0049に記載の合成例2、そして段落番号0051～0052に記載の合成例3の方法を参照して合成することができる。

（レターデーション上昇剤）

本発明では、溶液の紫外線吸収スペクトルにおいて最大吸収波長（ λ_{max} ）が250nmより短波長である棒状化合物をレターデーション上昇剤として用いる。

レターデーション上昇剤の機能の観点では、棒状化合物は、少なくとも一つの芳香族環を有することが好ましく、少なくとも二つの芳香族環を有することがさらに好ましい。

棒状化合物は、直線的な分子構造を有することが好ましい。直線的な分子構造とは、熱力学的に最も安定な構造において棒状化合物の分子構造が直線的であることを意味する。熱力学的に最も安定な構造は、結晶構造解析または分子軌道計算によって求めることができる。例えば、分子軌道計算ソフト（例、WinMOPAC20

00、富士通（株）製）を用いて分子軌道計算を行い、化合物の生成熱が最も小さくなるような分子の構造を求めることができる。分子構造が直線的であるとは、上記のように計算して求められる熱力学的に最も安定な構造において、分子構造の角度が140度以上であることを意味する。

棒状化合物は、液晶性を示すことが好ましい。棒状化合物は、加熱により液晶性を示す（サーモトロピック液晶性を有する）ことがさらに好ましい。液晶相は、ネマチック相またはスメクティック相が好ましい。

棒状化合物としては、下記式（I）で表される化合物が好ましい。



式（I）において、 Ar^1 および Ar^2 は、それぞれ独立に、芳香族基である。

本明細書において、芳香族基は、アリール基（芳香族性炭化水素基）、置換アリール基、芳香族性ヘテロ環基および置換芳香族性ヘテロ環基を含む。

アリール基および置換アリール基の方が、芳香族性ヘテロ環基および置換芳香族性ヘテロ環基よりも好ましい。芳香族性ヘテロ環基のヘテロ環は、一般には不飽和である。芳香族性ヘテロ環は、5員環、6員環または7員環であることが好ましく、5員環または6員環であることがさらに好ましい。芳香族性ヘテロ環は一般に最多の二重結合を有する。ヘテロ原子としては、窒素原子、酸素原子または硫黄原子が好ましく、窒素原子または硫黄原子がさらに好ましい。芳香族性ヘテロ環の例には、フラン環、チオフェン環、ピロール環、オキサゾール環、イソオキサゾール環、チアゾール環、イソチアゾール環、イミダゾール環、ピラゾール環、フラザン環、トリアゾール環、ピラン環、ピリジン環、ピリダジン環、ピリミジン環、ピラジン環、および1, 3, 5-トリアジン環が含まれる。

芳香族基の芳香族環としては、ベンゼン環、フラン環、チオフェン環、ピロール環、オキサゾール環、チアゾール環、イミダゾール環、トリアゾール環、ピリジン環、ピリミジン環およびピラジン環が好ましく、ベンゼン環が特に好ましい。

置換アリール基および置換芳香族性ヘテロ環基の置換基の例には、ハロゲン原子（F、Cl、Br、I）、ヒドロキシル、カルボキシル、シアノ、アミノ、ア

ルキルアミノ基（例、メチルアミノ、エチルアミノ、ブチルアミノ、ジメチルアミノ）、ニトロ、スルホ、カルバモイル、アルキルカルバモイル基（例、N-メチルカルバモイル、N-エチルカルバモイル、N, N-ジメチルカルバモイル）、スルファモイル、アルキルスルファモイル基（例、N-メチルスルファモイル、N-エチルスルファモイル、N, N-ジメチルスルファモイル）、ウレイド、アルキルウレイド基（例、N-メチルウレイド、N, N-ジメチルウレイド、N, N, N'-トリメチルウレイド）、アルキル基（例、メチル、エチル、プロピル、ブチル、ペンチル、ヘプチル、オクチル、イソプロピル、s-ブチル、t-アミル、シクロヘキシル、シクロペンチル）、アルケニル基（例、ビニル、アリル、ヘキセニル）、アルキニル基（例、エチニル、ブチニル）、アシル基（例、ホルミル、アセチル、ブチリル、ヘキサノイル、ラウリル）、アシルオキシ基（例、アセトキシ、ブチリルオキシ、ヘキサノイルオキシ、ラウリルオキシ）、アルコキシ基（例、メトキシ、エトキシ、プロポキシ、ブトキシ、ペンチルオキシ、ヘプチルオキシ、オクチルオキシ）、アリールオキシ基（例、フェノキシ）、アルコキシカルボニル基（例、メトキシカルボニル、エトキシカルボニル、プロポキシカルボニル、ブトキシカルボニル、ペンチルオキシカルボニル、ヘプチルオキシカルボニル）、アリールオキシカルボニル基（例、フェノキシカルボニル）、アルコキシカルボニルアミノ基（例、ブトキシカルボニルアミノ、ヘキシルオキシカルボニルアミノ）、アルキルチオ基（例、メチルチオ、エチルチオ、プロピルチオ、ブチルチオ、ペンチルチオ、ヘプチルチオ、オクチルチオ）、アリールチオ基（例、フェニルチオ）、アルキルスルホニル基（例、メチルスルホニル、エチルスルホニル、プロピルスルホニル、ブチルスルホニル、ペンチルスルホニル、ヘプチルスルホニル、オクチルスルホニル）、アミド基（例、アセトアミド、ブチルアミド基、ヘキシルアミド、ラウリルアミド）および非芳香族性複素環基（例、モルホルル、ピラジニル）が含まれる。

置換アリール基および置換芳香族性ヘテロ環基の置換基としては、ハロゲン原子、シアノ、カルボキシル、ヒドロキシル、アミノ、アルキル置換アミノ基、アシル基、アシルオキシ基、アミド基、アルコキシカルボニル基、アルコキシ基、アルキルチオ基およびアルキル基が好ましい。

アルキルアミノ基、アルコキシカルボニル基、アルコキシ基およびアルキルチオ基のアルキル部分とアルキル基とは、さらに置換基を有していてもよい。アルキル部分およびアルキル基の置換基の例には、ハロゲン原子、ヒドロキシル、カルボキシル、シアノ、アミノ、アルキルアミノ基、ニトロ、スルホ、カルバモイル、アルキルカルバモイル基、スルファモイル、アルキルスルファモイル基、ウレイド、アルキルウレイド基、アルケニル基、アルキニル基、アシル基、アシルオキシ基、アルコキシ基、アリールオキシ基、アルコキシカルボニル基、アリールオキシカルボニル基、アルコキシカルボニルアミノ基、アルキルチオ基、アリールチオ基、アルキルスルホニル基、アミド基および非芳香族性複素環基が含まれる。アルキル部分およびアルキル基の置換基としては、ハロゲン原子、ヒドロキシル、アミノ、アルキルアミノ基、アシル基、アシルオキシ基、アシルアミノ基、アルコキシカルボニル基およびアルコキシ基が好ましい。

式 (I) において、 L^1 は、アルキレン基、アルケニレン基、アルキニレン基、二価の飽和ヘテロ環基、 $-O-$ 、 $-CO-$ およびそれらの組み合わせからなる群より選ばれる二価の連結基である。

アルキレン基は、環状構造を有していてもよい。環状アルキレン基としては、シクロヘキシレンが好ましく、1, 4-シクロヘキシレンが特に好ましい。鎖状アルキレン基としては、直鎖状アルキレン基の方が分岐を有するアルキレン基よりも好ましい。

アルキレン基の炭素原子数は、1 乃至 20 であることが好ましく、1 乃至 15 であることがより好ましく、1 乃至 10 であることがさらに好ましく、1 乃至 8 であることがさらにまた好ましく、1 乃至 6 であることが最も好ましい。

アルケニレン基およびアルキニレン基は、環状構造よりも鎖状構造を有することが好ましく、分岐を有する鎖状構造よりも直鎖状構造を有することがさらに好ましい。

アルケニレン基およびアルキニレン基の炭素原子数は、2 乃至 10 であることが好ましく、2 乃至 8 であることがより好ましく、2 乃至 6 であることがさらに好ましく、2 乃至 4 であることがさらにまた好ましく、2 (ビニレンまたはエチニレン) であることが最も好ましい。

二価の飽和ヘテロ環基は、3員乃至9員のヘテロ環を有することが好ましい。ヘテロ環のヘテロ原子は、酸素原子、窒素原子、ホウ素原子、硫黄原子、ケイ素原子、リン原子またはゲルマニウム原子が好ましい。飽和ヘテロ環の例には、ピペリジン環、ピペラジン環、モルホリン環、ピロリジン環、イミダゾリジン環、テトラヒドロフラン環、テトラヒドロピラン環、1, 3-ジオキサン環、1, 4-ジオキサン環、テトラヒドロチオフェン環、1, 3-チアゾリジン環、1, 3-オキサゾリジン環、1, 3-ジオキソラン環、1, 3-ジチオラン環および1, 3, 2-ジオキサボロランが含まれる。特に好ましい二価の飽和ヘテロ環基は、ピペラジン-1, 4-ジイレン、1, 3-ジオキサン-2, 5-ジイレンおよび1, 3, 2-ジオキサボロラン-2, 5-ジイレンである。

組み合わせからなる二価の連結基の例を示す。

L-1: $-\text{O}-\text{CO}-\text{アルキレン基}-\text{CO}-\text{O}-$

L-2: $-\text{CO}-\text{O}-\text{アルキレン基}-\text{O}-\text{CO}-$

L-3: $-\text{O}-\text{CO}-\text{アルケニレン基}-\text{CO}-\text{O}-$

L-4: $-\text{CO}-\text{O}-\text{アルケニレン基}-\text{O}-\text{CO}-$

L-5: $-\text{O}-\text{CO}-\text{アルキニレン基}-\text{CO}-\text{O}-$

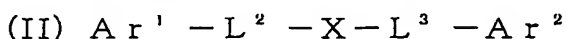
L-6: $-\text{CO}-\text{O}-\text{アルキニレン基}-\text{O}-\text{CO}-$

L-7: $-\text{O}-\text{CO}-\text{二価の飽和ヘテロ環基}-\text{CO}-\text{O}-$

L-8: $-\text{CO}-\text{O}-\text{二価の飽和ヘテロ環基}-\text{O}-\text{CO}-$

式(I)の分子構造において、 L^1 を挟んで、 Ar^1 と Ar^2 とが形成する角度は、140度以上であることが好ましい。

棒状化合物としては、下記式(II)で表される化合物がさらに好ましい。



式(II)において、 Ar^1 および Ar^2 は、それぞれ独立に、芳香族基である。芳香族基の定義および例は、式(I)の Ar^1 および Ar^2 と同様である。

式(II)において、 L^2 および L^3 は、それぞれ独立に、アルキレン基、 $-\text{O}-$ 、 $-\text{CO}-$ およびそれらの組み合わせからなる群より選ばれる二価の連結基である。

アルキレン基は、環状構造よりも鎖状構造を有することが好ましく、分岐を有

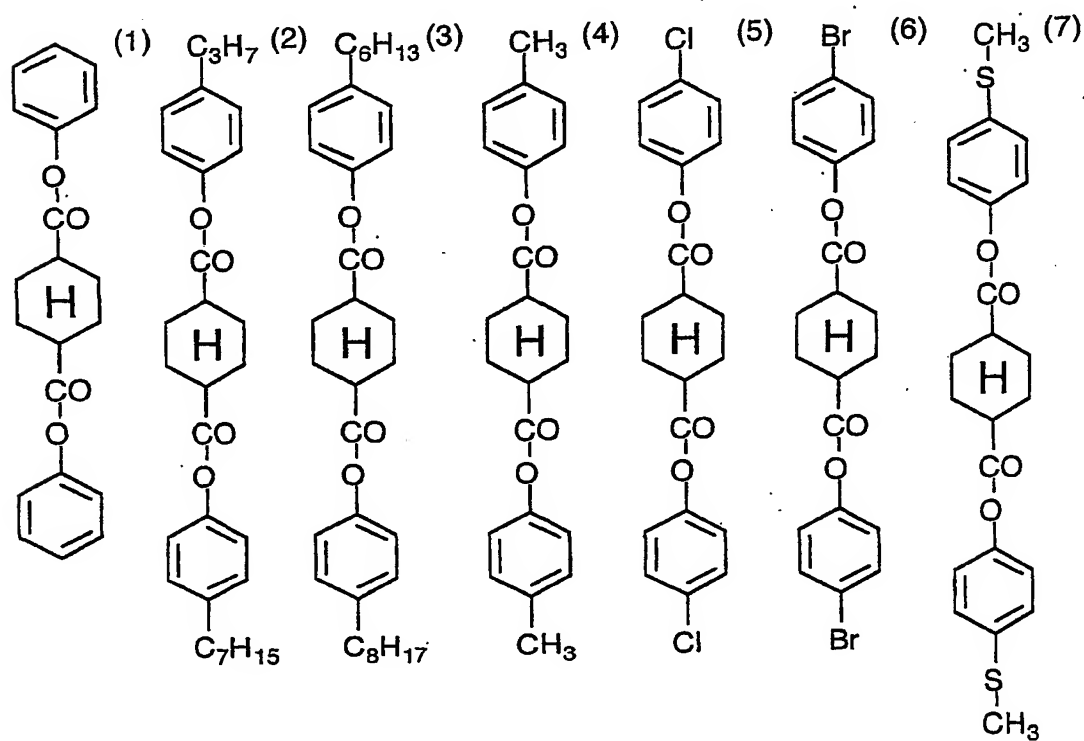
する鎖状構造よりも直鎖状構造を有することがさらに好ましい。

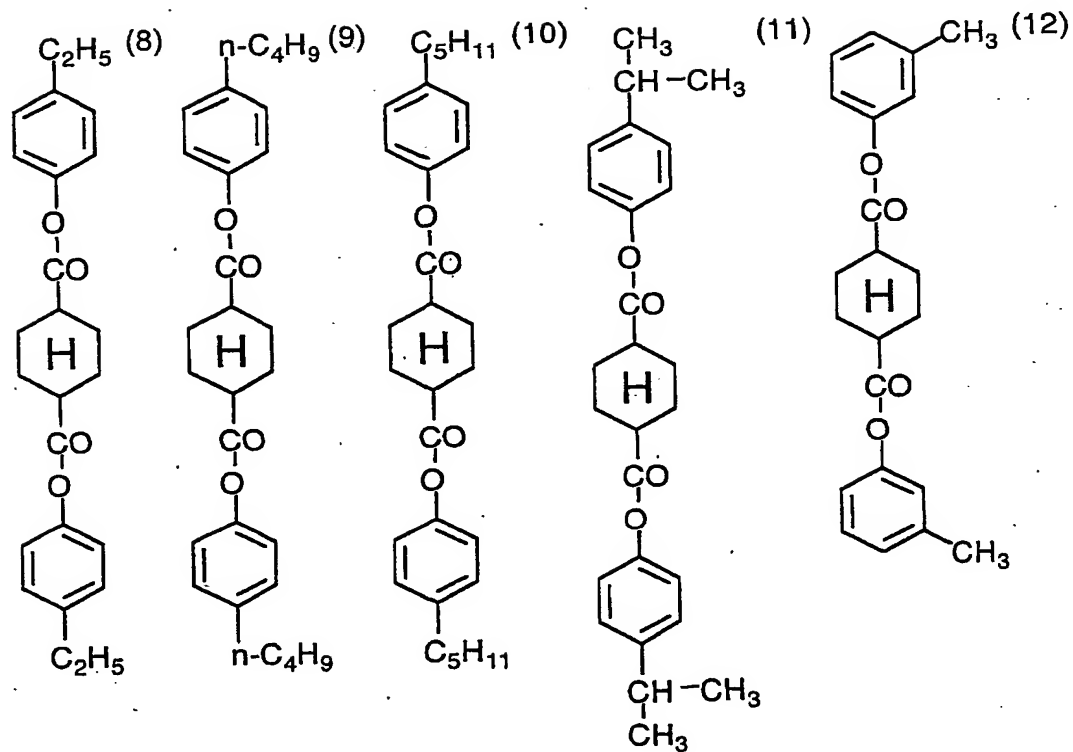
アルキレン基の炭素原子数は、1乃至10であることが好ましく、1乃至8であることがより好ましく、1乃至6であることがさらに好ましく、1乃至4であることがさらにまた好ましく、1または2（メチレンまたはエチレン）であることが最も好ましい。

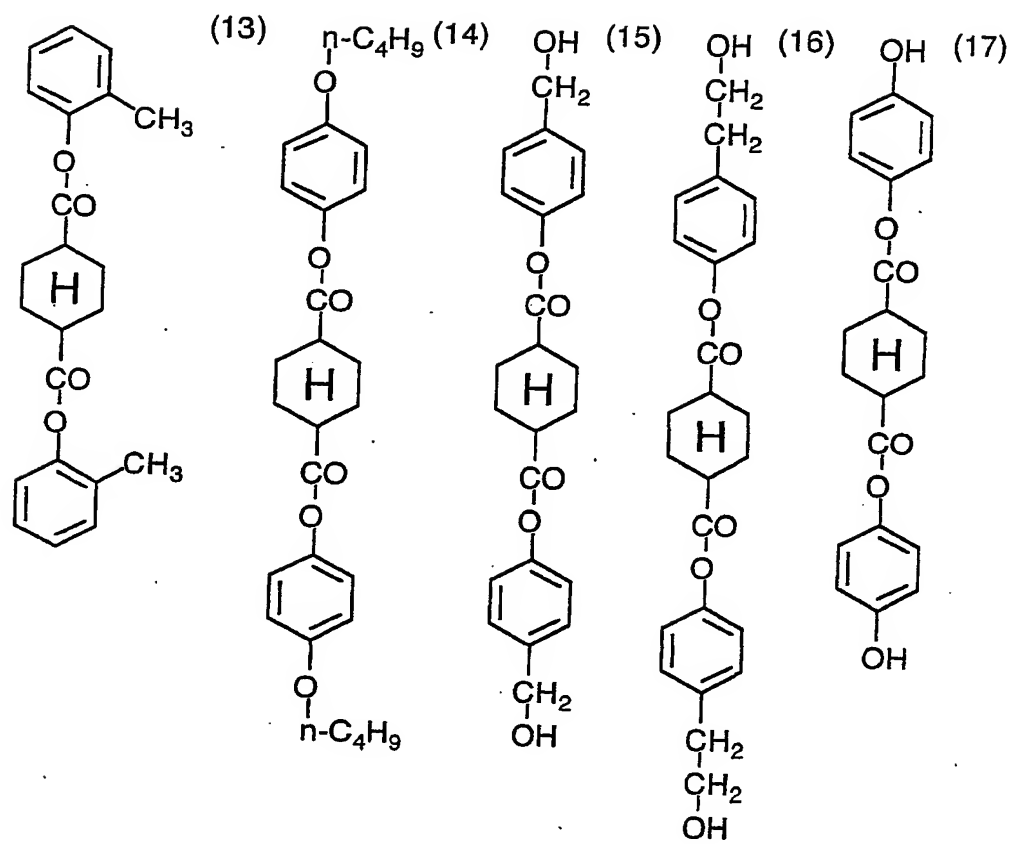
L^2 および L^3 は、 $-O-CO-$ または $-CO-O-$ であることが特に好ましい。

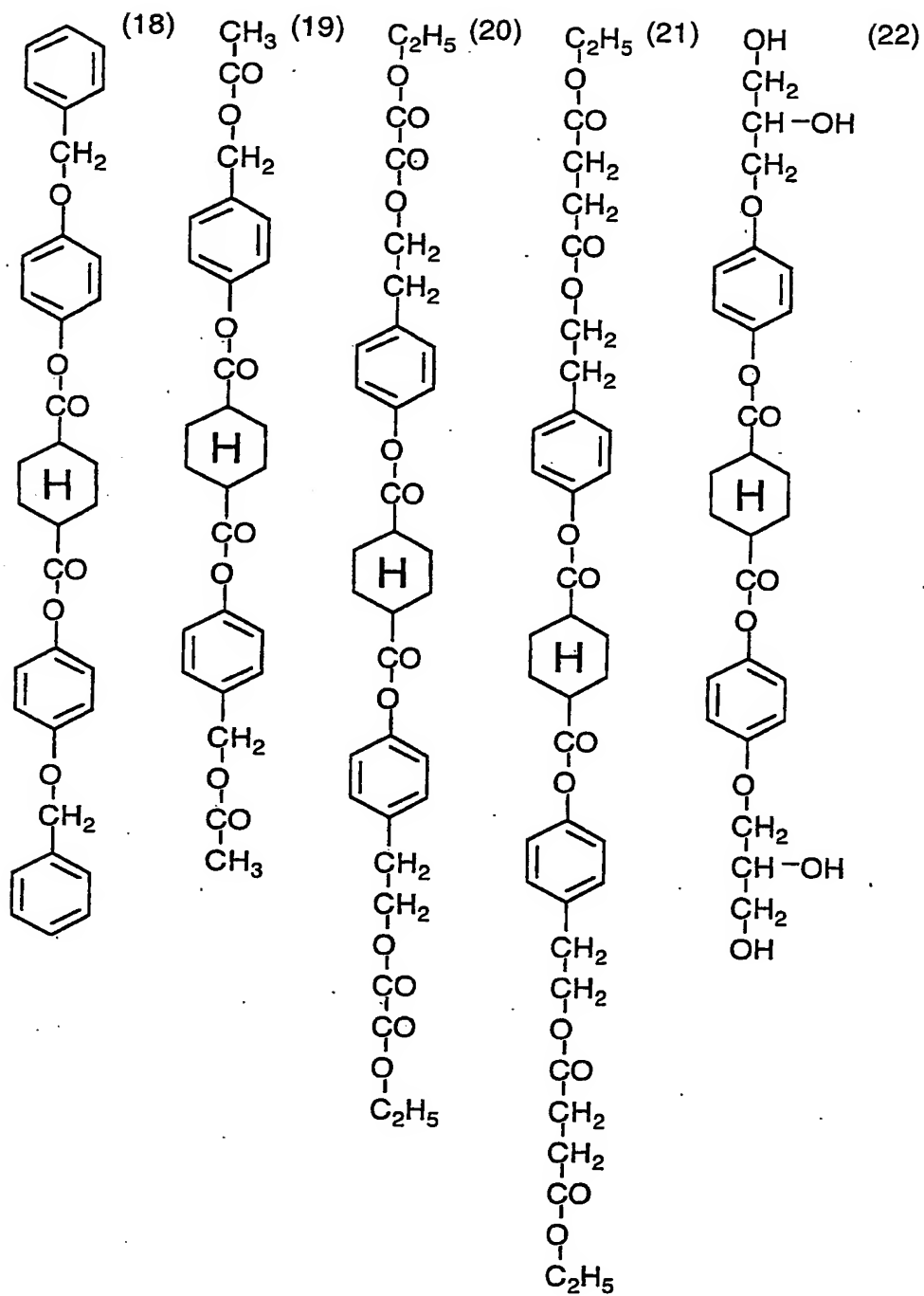
式 (II) において、Xは、1, 4-シクロヘキシレン、ビニレンまたはエチニレンである。

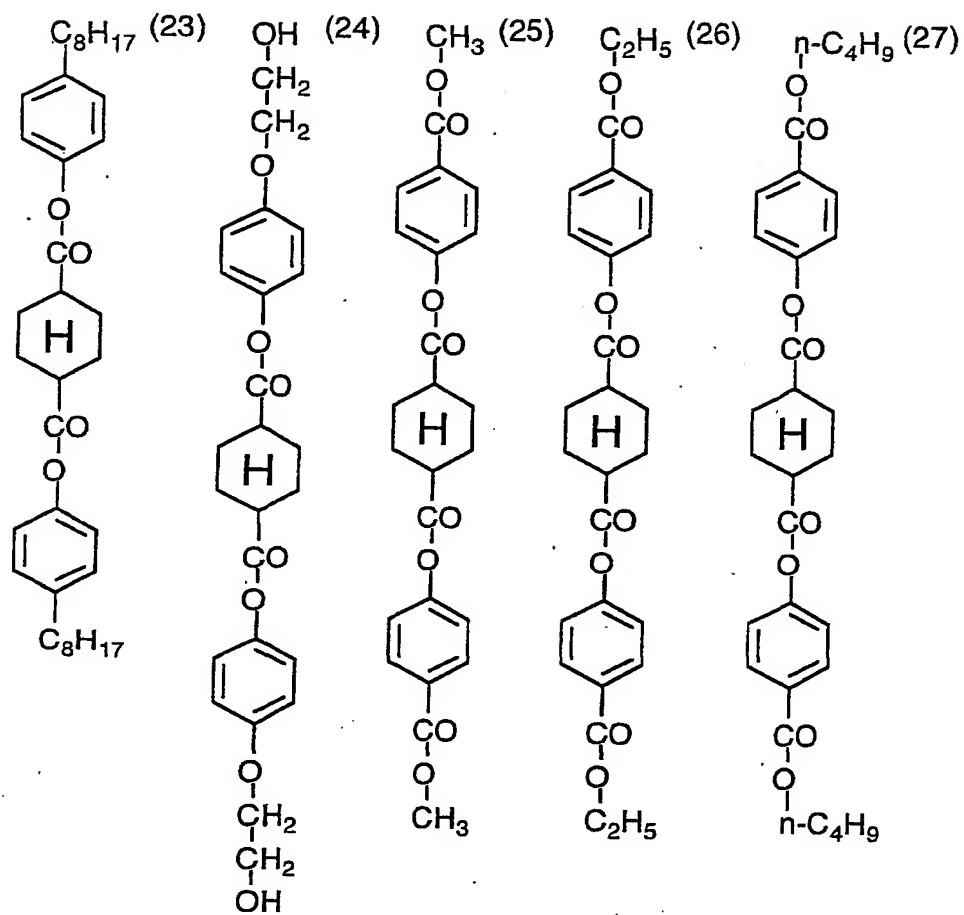
以下に、式 (I) で表される化合物の具体例を示す。

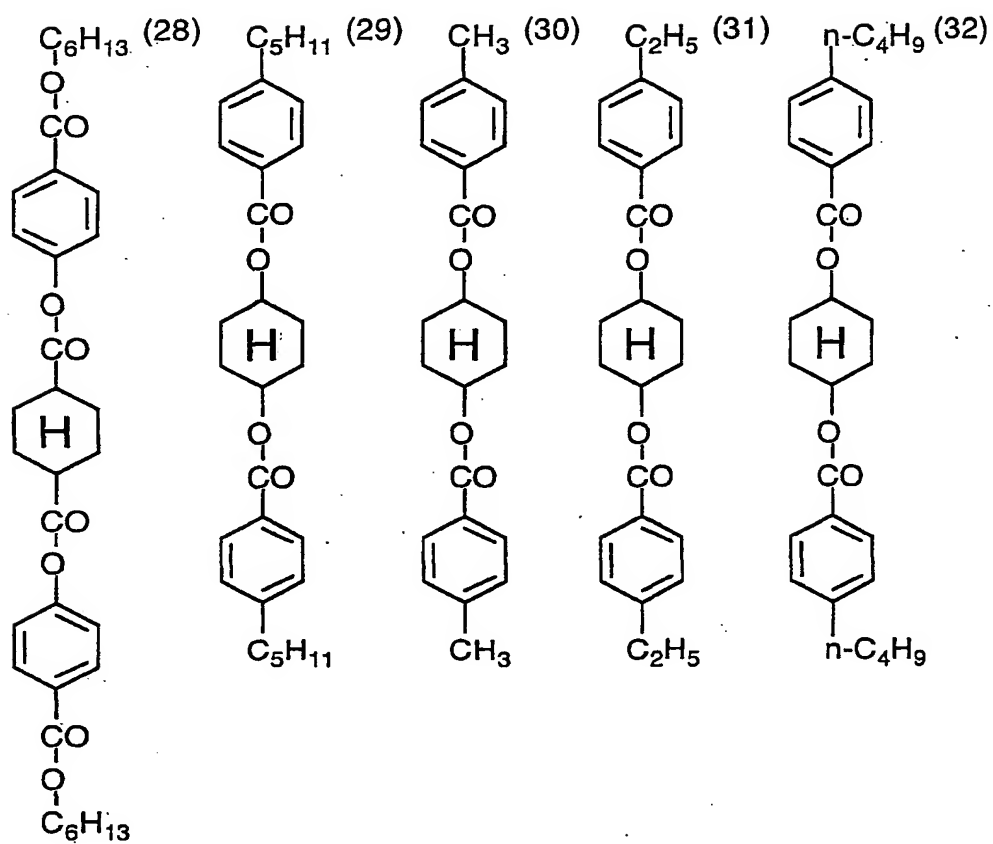


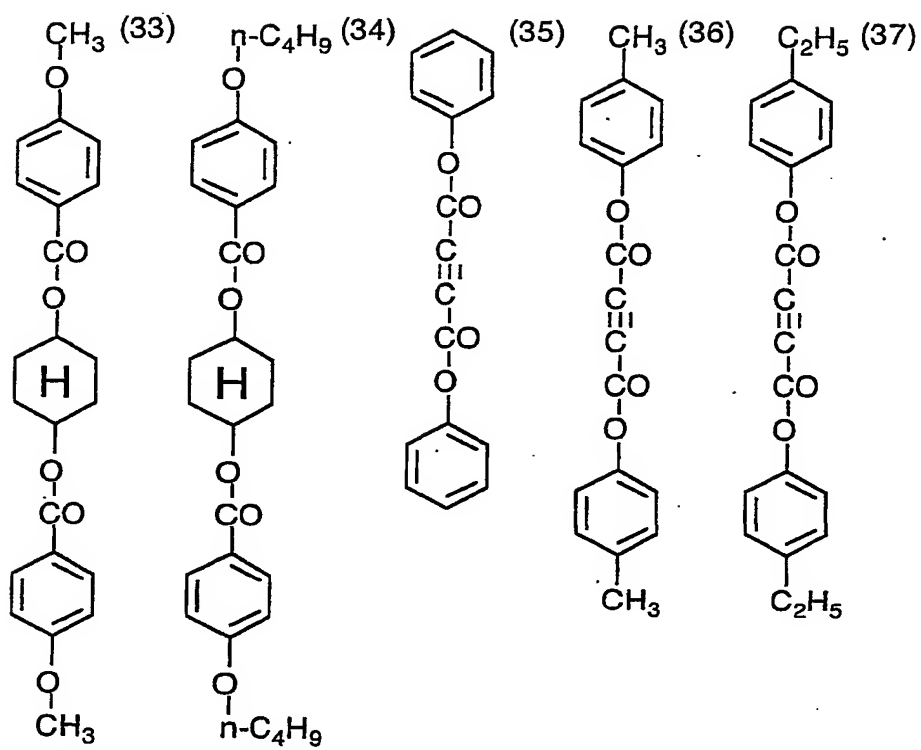


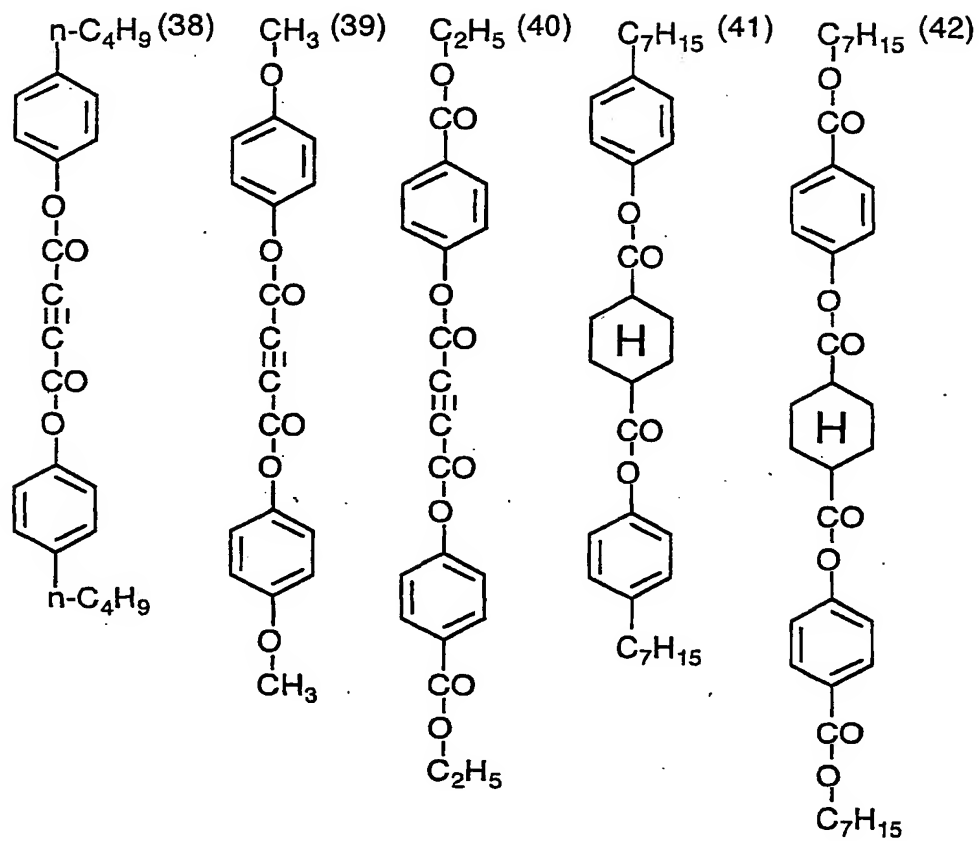


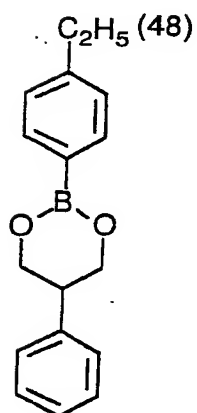
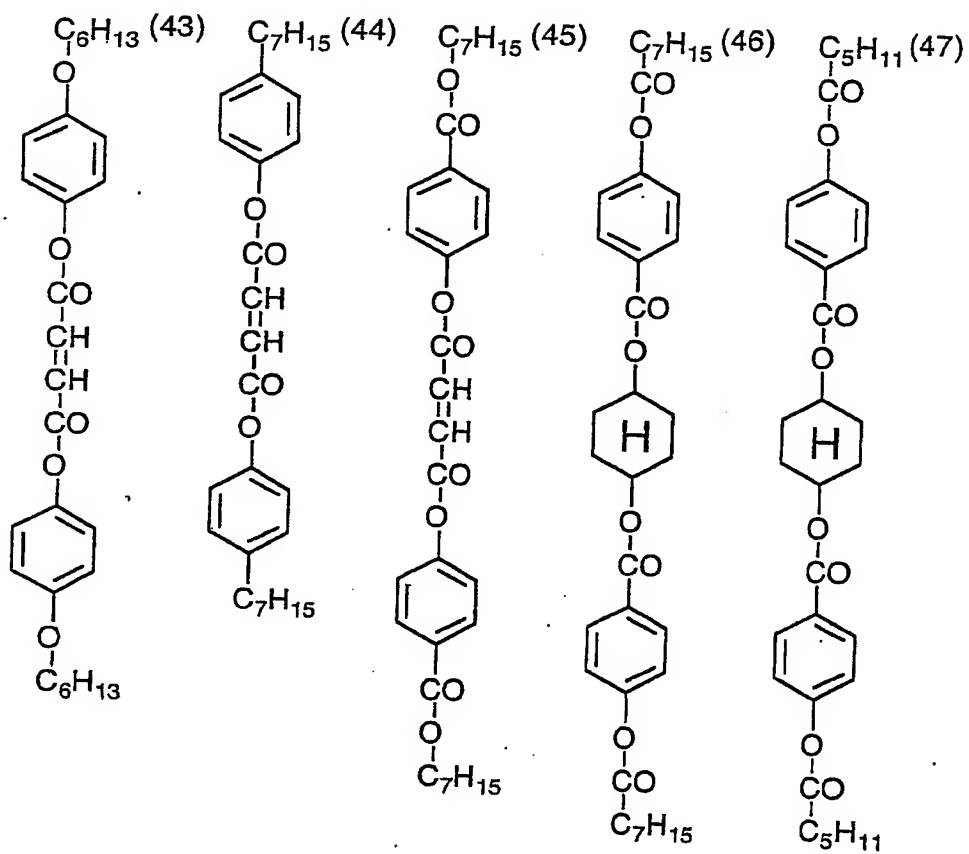


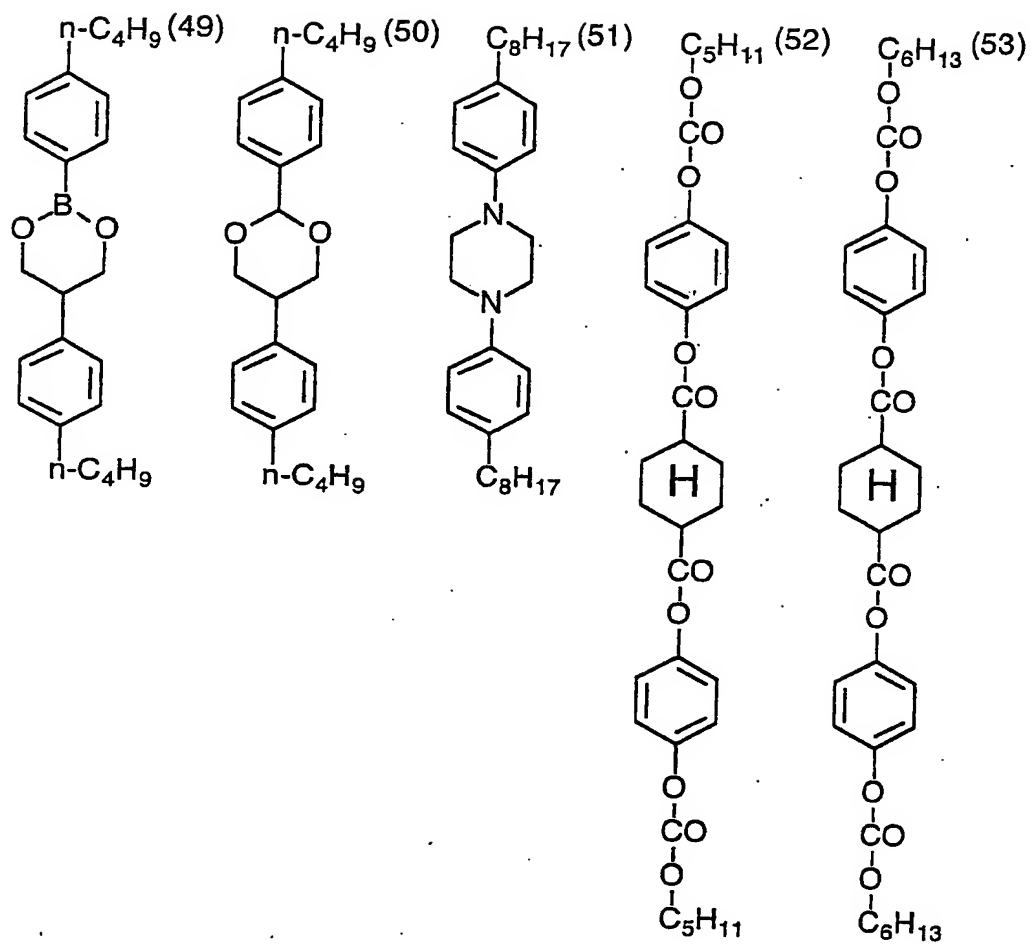




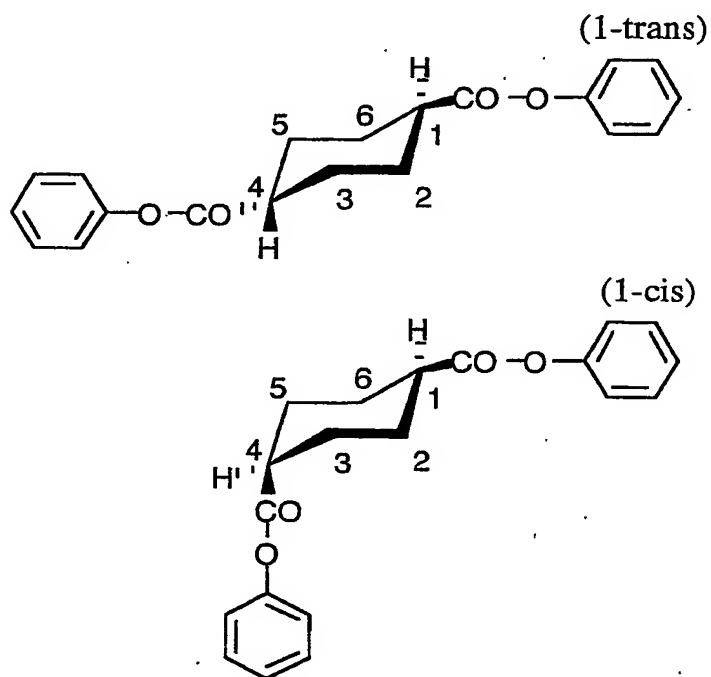








具体例 (1) ~ (34)、(41)、(42)、(46)、(47)、(52)、(53) は、シクロヘキサン環の1位と4位とに二つの不斉炭素原子を有する。ただし、具体例 (1)、(4) ~ (34)、(41)、(42)、(46)、(47)、(52)、(53) は、対称なメソ型の分子構造を有するため光学異性体 (光学活性) はなく、幾何異性体 (トランス型とシス型) のみ存在する。具体例 (1) のトランス型 (1-trans) とシス型 (1-cis) とを、以下に示す。



前述したように、棒状化合物は直線的な分子構造を有することが好ましい。そのため、トランス型の方がシス型よりも好ましい。

具体例(2)および(3)は、幾何異性体に加えて光学異性体(合計4種の異性体)を有する。幾何異性体については、同様にトランス型の方がシス型よりも好ましい。光学異性体については、特に優劣はなく、D、Lあるいはラセミ体のいずれでもよい。

具体例(43)～(45)では、中心のビニレン結合にトランス型とシス型とがある。上記と同様の理由で、トランス型の方がシス型よりも好ましい。

具体例(10)、(23)、(29)および(45)のトランス型について、溶液の紫外線吸収スペクトルの吸収極大を与える波長(λ_{\max})を以下に示す。

10-trans: 220 nm

23-trans: 230 nm

29-trans: 240 nm

41-trans: 230 nm

溶液の紫外線吸収スペクトルにおいて最大吸収波長(λ_{\max})が250 nmより短波長である棒状化合物を、二種類以上併用してもよい。

棒状化合物は、文献記載の方法を参照して合成できる。文献としては、Mol. Cryst. Liq. Cryst., 53巻、229ページ(1979年)、同89巻、93ページ(1982年)、同145巻、111ページ(1987年)、同170巻、43ページ(1989年)、J. Am. Chem. Soc., 113巻、1349ページ(1991年)、同118巻、5346ページ(1996年)、同92巻、1582ページ(1970年)、J. Org. Chem., 40巻、420ページ(1975年)、Tetrahedron, 48巻16号、3437ページ(1992年)を挙げることができる。

レターデーション上昇剤の添加量は、ポリマーの量の0.1乃至30質量%であることが好ましく、0.5乃至20質量%であることがさらに好ましい。

(ポリマーフィルムの製造)

ソルベントキャスト法によりポリマーフィルムを製造することが好ましい。ソルベントキャスト法では、ポリマーを有機溶媒に溶解した溶液(ドープ)を用い

てフィルムを製造する。

有機溶媒は、炭素原子数が3乃至12のエーテル、炭素原子数が3乃至12のケトン、炭素原子数が3乃至12のエステルおよび炭素原子数が1乃至6のハロゲン化炭化水素から選ばれる溶媒を含むことが好ましい。

エーテル、ケトンおよびエステルは、環状構造を有していてもよい。エーテル、ケトンおよびエステルの官能基（すなわち、 $-O-$ 、 $-CO-$ および $-COO-$ ）のいずれかを二つ以上有する化合物も、有機溶媒として用いることができる。有機溶媒は、アルコール性水酸基のような他の官能基を有していてもよい。二種類以上の官能基を有する有機溶媒の場合、その炭素原子数は、いずれかの官能基を有する化合物の規定範囲内であればよい。

炭素原子数が3乃至12のエーテル類の例には、ジイソプロピルエーテル、ジメトキシメタン、ジメトキシエタン、1,4-ジオキサン、1,3-ジオキソラン、テトラヒドロフラン、アニソールおよびフェネトールが含まれる。

炭素原子数が3乃至12のケトン類の例には、アセトン、メチルエチルケトン、ジエチルケトン、ジイソブチルケトン、シクロヘキサノンおよびメチルシクロヘキサノンが含まれる。

炭素原子数が3乃至12のエステル類の例には、エチルホルメート、プロピルホルメート、ペンチルホルメート、メチルアセテート、エチルアセテートおよびペンチルアセテートが含まれる。

二種類以上の官能基を有する有機溶媒の例には、2-エトキシエチルアセテート、2-メトキシエタノールおよび2-ブトキシエタノールが含まれる。

炭素原子数が1～6のハロゲン化炭化水素としては、メチレンクロリドが代表的である。なお、技術的にはハロゲン化炭化水素は問題なく使用できるが、地球環境や作業環境の観点では、有機溶媒はハロゲン化炭化水素を実質的に含まないことが好ましい。「実質的に含まない」とは、有機溶媒中のハロゲン化炭化水素の割合が5質量%未満（好ましくは2質量%未満）であることを意味する。また、製造したセルロースアセテートフィルムから、メチレンクロリドのようなハロゲン化炭化水素が全く検出されないことが好ましい。

溶媒は2種類以上の有機溶媒を混合して用いてもよい。特に好ましい有機溶媒

は、互いに異なる3種類以上の混合溶媒であって、第1の溶媒が炭素原子数が3～4のケトンおよび炭素原子数が3～4のエステル或いはその混合液であり、第2の溶媒が炭素原子数が5～7のケトン類またはアセト酢酸エステルから選ばれ、第3の溶媒として沸点が30～170℃のアルコールまたは沸点が30～170℃の炭化水素から選ばれる。第1の溶媒のケトンおよびエステルとしては、アセトン、酢酸メチル、蟻酸メチル、蟻酸エチルを用いることが好ましい。第2の溶媒としては、シクロペンタノン、シクロヘキサノン、アセチル酢酸メチルを用いることが好ましい。

第3の溶媒は、沸点が30～170℃のアルコールまたは沸点が30～170℃の炭化水素から選ばれる。アルコールは一価であることが好ましい。アルコールの炭化水素部分は、直鎖であっても、分岐を有していても、環状であってもよい。炭化水素部分は、飽和脂肪族炭化水素であることが好ましい。アルコールの水酸基は、第一級～第三級のいずれであってもよい。アルコールの例（括弧内に沸点を記入する）には、メタノール（沸点：64.65℃）、エタノール（78.325℃）、1-プロパノール（97.15℃）、2-プロパノール（82.4℃）、1-ブタノール（117.9℃）、2-ブタノール（99.5℃）、t-ブタノール（82.45℃）、1-ペンタノール（137.5℃）、2-メチル-2-ブタノール（101.9℃）、シクロヘキサノール（161℃）、2-フルオロエタノール（103℃）、2, 2, 2-トリフルオロエタノール（80℃）、2, 2, 3, 3-テトラフルオロ-1-プロパノール（109℃）、1, 3-ジフルオロ-2-プロパノール（55℃）、1, 1, 1, 3, 3, 3-ヘキサ-2-メチル-2-プロパノール（62℃）、1, 1, 1, 3, 3, 3-ヘキサフルオロ-2-プロパノール（59℃）、2, 2, 3, 3, 3-ペンタフルオロ-1-プロパノール（80℃）、2, 2, 3, 4, 4, 4-ヘキサフルオロ-1-ブタノール（114℃）、2, 2, 3, 3, 4, 4, 4-ヘプタフルオロ-1-ブタノール（97℃）、パーフルオロ-tert-ブタノール（45℃）、2, 2, 3, 3, 4, 4, 5, 5-オクトフルオロ-1-ペンタノール（142℃）、2, 2, 3, 3, 4, 4-ヘキサフルオロ-1, 5-ペンタンジオール（111.5℃）、3, 3, 4, 4, 5, 5, 6, 6, 7, 7, 8, 8, 8-トリ

デカフルオロ-1-オクタノール (95℃)、2, 2, 3, 3, 4, 4, 5, 5, 6, 6, 7, 7, 8, 8, 8-ペンタデカフルオロ-1-オクタノール (165℃)、1-(ペンタフルオロフェニル) エタノール (82℃) および 2, 3, 4, 5, 6-ペンタフルオロベンジルアルコール (115℃) が含まれる。アルコールについては、2種類以上の混合液で用いることが好ましい。

炭化水素は、直鎖であっても、分岐を有していても、環状であってもよい。芳香族炭化水素と脂肪族炭化水素のいずれも用いることができる。脂肪族炭化水素は、飽和であっても不飽和であってもよい。炭化水素の例には、シクロヘキサン (沸点: 80.7℃)、ヘキサン (69℃)、ベンゼン (80.1℃)、トルエン (110.6℃) およびキシレン (138.4~144.4℃) が含まれる。

3種混合溶媒中には、第1の溶媒が30~95質量%含まれることが好ましく、40~90質量%含まれることがより好ましく、50~90質量%含まれることがさらに好ましく、50~90質量%含まれることが最も好ましい。第2の溶媒及び第3の溶媒は、1~40質量%含まれることが好ましく、3~30質量%含まれることがより好ましい。

溶媒の組み合わせとしては、ポリマー/酢酸メチル/シクロヘキサノン/メタノール/エタノール (X/(70-X)/20/5/5、質量部)、ポリマー/酢酸メチル/メチルエチルケトン/アセトン/メタノール/エタノール (X/(50-X)/20/20/5/5、質量部)、ポリマー/アセトン/アセト酢酸メチル/エタノール (X/(75-X)/20//5、質量部)、ポリマー/酢酸メチル/シクロペンタノン/メタノール/エタノール (X/(80-X)/10/5/5、質量部)、ポリマー/酢酸メチル/1, 3ジオキソラン/メタノール/エタノール (X/(70-X)/20/5/5、質量部)、ポリマー/酢酸メチル/ジオキサン/アセトン/メタノール/エタノール (X/(60-X)/20/10/5/5、質量部)、ポリマー/1, 3ジオキソラン/シクロヘキサノン/メチルエチルケトン/メタノール/エタノール (X/(55-X)/20/10/5/5/5、質量部) が好ましい。ここでXは、ポリマーの質量部を表わし、10乃至25の範囲にあることが好ましく、15~23の範囲にあることが特に好ましい。

ポリマー溶液を調製する際に、容器内に不活性ガス（例、窒素ガス）を充填させてもよい。ポリマー溶液の製膜直前の粘度は、製膜の際、流延可能な範囲であればよく、通常 $10 \text{ ps} \cdot \text{s} \sim 2000 \text{ ps} \cdot \text{s}$ の範囲に調整することが好ましく、特に $30 \text{ ps} \cdot \text{s} \sim 400 \text{ ps} \cdot \text{s}$ の範囲に調整することが好ましい。

一般的な方法でポリマー溶液を調製できる。一般的な方法とは、 0°C 以上の温度（常温または高温）で、処理することを意味する。溶液の調製は、通常のソルベントキャスト法におけるドープの調製方法および装置を用いて実施することができる。なお、一般的な方法の場合は、有機溶媒としてハロゲン化炭化水素（特にメチレンクロリド）を用いることが好ましい。

ポリマーの量は、得られる溶液中に10乃至40質量%含まれるように調整する。ポリマーの量は、10乃至30質量%であることがさらに好ましい。有機溶媒（主溶媒）中には、後述する任意の添加剤を添加しておいてもよい。

溶液は、常温（0乃至 40°C ）でポリマーと有機溶媒とを攪拌することにより調製することができる。高濃度の溶液は、加圧および加熱条件下で攪拌してもよい。具体的には、ポリマーと有機溶媒とを加圧容器に入れて密閉し、加圧下で溶媒の常温における沸点以上、かつ溶媒が沸騰しない範囲の温度に加熱しながら攪拌する。加熱温度は、通常は 40°C 以上であり、好ましくは60乃至 200°C であり、さらに好ましくは80乃至 110°C である。

各成分は予め粗混合してから容器に入れてもよい。また、順次容器に投入してもよい。容器は攪拌できるように構成されている必要がある。不活性気体（例、窒素ガス）を注入して容器を加圧することができる。また、加熱による溶媒の蒸気圧の上昇を利用してよい。あるいは、容器を密閉後、各成分を圧力下で添加してもよい。

加熱する場合、容器の外部より加熱することが好ましい。例えば、ジャケットタイプの加熱装置を用いることができる。また、容器の外部にプレートヒーターを設け、配管して液体を循環させることにより容器全体を加熱することもできる。

容器内部に攪拌翼を設けて、これを用いて攪拌することが好ましい。攪拌翼は、容器の壁付近に達する長さのものが好ましい。攪拌翼の末端には、容器の壁の

液膜を更新するため、掻取翼を設けることが好ましい。

容器には、計器類（例、圧力計、温度計）を設置してもよい。容器内で各成分を溶剤中に溶解する。調製したドープは冷却後容器から取り出すか、あるいは、取り出した後、適当な手段（例えば、熱交換器）を用いて冷却する。

冷却溶解法により、溶液を調製することもできる。冷却溶解法では、通常の溶解方法では溶解させることが困難な有機溶媒中にもポリマーを溶解させることができる。なお、通常の溶解方法でポリマーを溶解できる溶媒であっても、冷却溶解法によると迅速に均一な溶液が得られるとの効果がある。

冷却溶解法では最初に、室温で有機溶媒中にポリマーを攪拌しながら徐々に添加する。

ポリマーの量は、この混合物中に10乃至40質量%含まれるように調整することが好ましい。ポリマーの量は、10乃至30質量%であることがさらに好ましい。さらに、混合物中には後述する任意の添加剤を添加しておいてもよい。

次に、混合物を -100 乃至 -10°C （好ましくは -80 乃至 -10°C 、さらに好ましくは -50 乃至 -20°C 、最も好ましくは -50 乃至 -30°C ）に冷却する。冷却は、例えば、ドライアイス・メタノール浴（ -75°C ）や冷却したジエチレングリコール溶液（ -30 乃至 -20°C ）中で実施できる。このように冷却すると、ポリマーと有機溶媒の混合物は固化する。

冷却速度は、 $4^{\circ}\text{C}/\text{分}$ 以上であることが好ましく、 $8^{\circ}\text{C}/\text{分}$ 以上であることがさらに好ましく、 $12^{\circ}\text{C}/\text{分}$ 以上であることが最も好ましい。冷却速度は、速いほど好ましいが、 $10000^{\circ}\text{C}/\text{秒}$ が理論的な上限であり、 $1000^{\circ}\text{C}/\text{秒}$ が技術的な上限であり、そして $100^{\circ}\text{C}/\text{秒}$ が実用的な上限である。なお、冷却速度は、冷却を開始する時の温度と最終的な冷却温度との差を冷却を開始してから最終的な冷却温度に達するまでの時間で割った値である。

さらに、これを 0 乃至 200°C （好ましくは 0 乃至 150°C 、さらに好ましくは 0 乃至 120°C 、最も好ましくは 0 乃至 50°C ）に加温すると、有機溶媒中にポリマーが溶解する。昇温は、室温中に放置するだけでもよし、温浴中で加温してもよい。

加温速度は、 $4^{\circ}\text{C}/\text{分}$ 以上であることが好ましく、 $8^{\circ}\text{C}/\text{分}$ 以上であることが

さらに好ましく、 $12^{\circ}\text{C}/\text{分}$ 以上であることが最も好ましい。加温速度は、速いほど好ましいが、 $10000^{\circ}\text{C}/\text{秒}$ が理論的な上限であり、 $1000^{\circ}\text{C}/\text{秒}$ が技術的な上限であり、そして $100^{\circ}\text{C}/\text{秒}$ が実用的な上限である。なお、加温速度は、加温を開始する時の温度と最終的な加温温度との差を加温を開始してから最終的な加温温度に達するまでの時間で割った値である。

以上のようにして、均一な溶液が得られる。なお、溶解が不十分である場合は冷却、加温の操作を繰り返してもよい。溶解が充分であるかどうかは、目視により溶液の外観を観察するだけで判断することができる。

冷却溶解法においては、冷却時の結露による水分混入を避けるため、密閉容器を用いることが望ましい。また、冷却加温操作において、冷却時に加圧し、加温時の減圧すると、溶解時間を短縮することができる。加圧および減圧を実施するためには、耐圧性容器を用いることが望ましい。

なお、セルロースアセテート（酢化度：60.9%、粘度平均重合度：299）を冷却溶解法によりメチルアセテート中に溶解した20質量%の溶液は、示差走査熱量測定（DSC）によると、 33°C 近傍にゾル状態とゲル状態との疑似相転移点が存在し、この温度以下では均一なゲル状態となる。従って、この溶液は疑似相転移温度以上、好ましくはゲル相転移温度プラス 10°C 程度の温度で保つ必要がある。ただし、この疑似相転移温度は、セルロースアセテートの酢化度、粘度平均重合度、溶液濃度や使用する有機溶媒により異なる。

調製したポリマー溶液（ドープ）から、ソルベントキャスト法によりポリマーフィルムを製造する。

ドープは、ドラムまたはバンド上に流延し、溶媒を蒸発させてフィルムを形成する。流延前のドープは、固形分量が18乃至35%となるように濃度を調整することが好ましい。ドラムまたはバンドの表面は、鏡面状態に仕上げておくことが好ましい。ソルベントキャスト法における流延および乾燥方法については、米国特許2336310号、同2367603号、同2492078号、同2492977号、同2492978号、同2607704号、同2739069号、同2739070号、英国特許640731号、同736892号の各明細書、特公昭45-4554号、同49-5614号、特開昭60-176834号、

同 60-203430 号、同 62-115035 号の各公報に記載がある。

ドープは、表面温度が 10℃以下のドラムまたはバンド上に流延することが好ましい。流延してから 2 秒以上風に当てて乾燥することが好ましい。得られたフィルムをドラムまたはバンドから剥ぎ取り、さらに 100 から 160℃まで逐次温度を変えた高温風で乾燥して残留溶剤を蒸発させることもできる。以上の方法は、特公平 5-17844 号公報に記載がある。この方法によると、流延から剥ぎ取りまでの時間を短縮することが可能である。この方法を実施するためには、流延時のドラムまたはバンドの表面温度においてドープがゲル化することが必要である。

また、調製したポリマー溶液（ドープ）を用いて 2 層以上の流延でフィルム化すべく、ソルベントキャスト法によりポリマーフィルムを作製してもよい。ドープは、ドラムまたはバンド上に流延し、溶媒を蒸発させてフィルムを形成する。流延前のドープは、固形分量が 10～40%となるように濃度を調整することが好ましい。ドラムまたはバンドの表面は、鏡面状態に仕上げておくことが好ましい。

ここで得られたポリマー溶液は、2 層以上の複数のポリマー溶液を流延するが、複数のポリマー溶液を流延する場合、支持体の進行方向に間隔を置いて設けた複数の流延口からポリマーを含む溶液をそれぞれ流延させて積層させながらフィルムを作製してもよく、例えば特開昭 61-158414 号、特開平 1-122419 号、特開平 11-198285 号の各公報に記載の方法が適応できる。また、2 つの流延口からポリマー溶液を流延することによってもフィルム化することでもよく、例えば特公昭 60-27562 号、特開昭 61-94724 号、特開昭 61-947245 号、特開昭 61-104813 号、特開昭 61-158413 号、特開平 6-134933 号、に記載の方法で実施できる。また、特開昭 56-162617 号に記載の高粘度ポリマー溶液の流れを低粘度のポリマー溶液で包み込み、その高、低粘度のポリマー溶液を同時に押出すポリマーフィルム流延方法でもよい。

或いはまた 2 個の流延口を用いて、第一の流延口により支持体に成型したフィルムを剥ぎ取り、支持体面に接していた側に第二の流延を行なうことでより、フ

フィルムを作製することでもよく、例えば特公昭44-20235号に記載されている方法である。

流延する複数のポリマー溶液は、同一の溶液でもよい。複数のポリマー層に機能を持たせるために、その機能に応じたポリマー溶液を、それぞれの流延口から押出せばよい。

さらにこのポリマー溶液は、他の機能層（例、接着層、染料層、帯電防止層、アンチハレーション層、UV吸収層、偏光層）を同時に流延することもできる。

従来の単層液では、必要なフィルム厚さにするためには高濃度で高粘度のポリマー溶液を押出すことが必要であり、その場合ポリマー溶液の安定性が悪くて固形物が発生し、ブツ故障となったり、平面性が不良であったりして問題となるが多かった。この解決として、複数のポリマー溶液を流延口から流延することにより、高粘度の溶液を同時に支持体上に押出すことができ、平面性も良化し優れた面状のフィルムが作製できるばかりでなく、濃厚なポリマー溶液を用いることで乾燥負荷の低減化が達成でき、フィルムの生産スピードを高めることができる。

ポリマーフィルムには、機械的物性を改良するため、または乾燥速度を向上するために、可塑剤を添加することができる。可塑剤としては、リン酸エステルまたはカルボン酸エステルが用いられる。リン酸エステルの例には、トリフェニルフォスフェート（TPP）およびトリクレジルホスフェート（TCP）が含まれる。カルボン酸エステルとしては、フタル酸エステルおよびクエン酸エステルが代表的である。フタル酸エステルの例には、ジメチルフタレート（DMP）、ジエチルフタレート（DEP）、ジブチルフタレート（DBP）、ジオクチルフタレート（DOP）、ジフェニルフタレート（DPP）およびジエチルヘキシルフタレート（DEHP）が含まれる。クエン酸エステルの例には、 α -アセチルクエン酸トリエチル（OACTE）および α -アセチルクエン酸トリブチル（OACTB）が含まれる。その他のカルボン酸エステルの例には、オレイン酸ブチル、リシノール酸メチルアセチル、セバシン酸ジブチル、種々のトリメリット酸エステルが含まれる。フタル酸エステル系可塑剤（DMP、DEP、DBP、DOP、DPP、DEHP）が好ましく用いられる。DEPおよびDPPが特に好ま

しい。

可塑剤の添加量は、ポリマーの量の0.1乃至25質量%であることが好ましく、1乃至20質量%であることがさらに好ましく、3乃至15質量%であることが最も好ましい。

ポリマーフィルムには、劣化防止剤（例、酸化防止剤、過酸化分解剤、ラジカル禁止剤、金属不活性化剤、酸捕獲剤、アミン）を添加してもよい。劣化防止剤については、特開平3-199201号、同5-1907073号、同5-194789号、同5-271471号、同6-107854号の各公報に記載がある。劣化防止剤の添加量は、調製する溶液（ドープ）の0.01乃至1質量%であることが好ましく、0.01乃至0.2質量%であることがさらに好ましい。添加量が0.01質量%未満であると、劣化防止剤の効果がほとんど認められない。添加量が1質量%を越えると、フィルム表面への劣化防止剤のブリードアウト（滲み出し）が認められる場合がある。特に好ましい劣化防止剤の例としては、ブチル化ヒドロキシトルエン（BHT）、トリベンジルアミン（TBA）を挙げることができる。

ポリマーフィルムには、製造時のハンドリング性向上のために、片面または両面にマット剤とポリマーを含有するマット層を設けてもよい。マット剤およびポリマーについては特開平10-44327に記載されている素材を好適に用いることができる。

ポリマーフィルムは、さらに延伸処理によりレターデーションを調整することができる。延伸倍率は、3乃至100%であることが好ましく、10乃至80%であることがさらに好ましく、15乃至60%であることが最も好ましい。

ポリマーフィルムの厚さは、10乃至200 μm が好ましく、20乃至150 μm が更に好ましく、最も好ましくは30乃至140 μm である。

従って、複屈折は、550nmの光で、0.00196乃至0.01375であることが好ましく、0.00168乃至0.006875が更に好ましく、最も好ましくは0.00275乃至0.00458である。

（ポリマーフィルムの表面処理）

ポリマーフィルムには、表面処理を施してもよい。具体的方法としては、コロナ放電処理、グロー放電処理、火炎処理、酸処理、アルカリ処理または紫外線照射処理を実施する。

フィルムの平面性を保持する観点から、これら処理においてポリマーフィルムの温度をガラス転移温度 (T_g) 以下とすることが好ましい。

偏光板の透明保護膜として使用する場合、偏光膜との接着性の観点から、酸処理またはアルカリ処理を実施することが特に好ましい。

以下、アルカリ酸化处理を例に、具体的に説明する。

フィルム表面をアルカリ溶液に浸漬した後、酸性溶液で中和し、水洗して乾燥するサイクルで行われることが好ましい。

アルカリ溶液としては、水酸化カリウム溶液、水酸化ナトリウム溶液が挙げられ、水酸化イオンの規定濃度は0.1 N乃至3.0 Nであることが好ましく、0.5 N乃至2.0 Nであることがさらに好ましい。アルカリ溶液温度は、室温乃至90℃の範囲が好ましく、40℃乃至70℃がさらに好ましい。

ポリマーフィルムとその上に設けられる層（接着層、配向膜、あるいは光学異方性層）との接着を改善するために、ポリマーフィルムに表面処理（例、グロー放電処理、コロナ放電処理、紫外線処理、火炎処理）を実施してもよい。これらのポリマーフィルムは、紫外線吸収剤を含むことが好ましい。また、特開平7-333433号公報に記載のようにポリマーフィルム上に接着層（下塗り層）を設けてもよい。接着層の厚みは0.1乃至2 μm であることが好ましく、0.2乃至1 μm であることがさらに好ましい。

（円偏光板）

円偏光板は、（直線）偏光膜と $\lambda/4$ 板からなる。

偏光膜は、一般に、両側に二枚の透明保護膜を配置する。一方の保護膜として、 $\lambda/4$ 板（上記のポリマーフィルム）を用いることができる。他方の保護膜は、通常のセルロースアセテートフィルムを用いてもよい。また、両側の保護膜として通常のセルロースアセテートフィルムを用いてもよい。

偏光膜には、ヨウ素系偏光膜、二色性染料を用いる染料系偏光膜やポリエー

偏光膜がある。ヨウ素系偏光膜および染料系偏光膜は、一般にポリビニルアルコール系フィルムを用いて製造する。

円偏光板では、 $\lambda/4$ 板の遅相軸と偏光膜の透過軸とが、実質的に45度となるように、 $\lambda/4$ 板と偏光膜とを配置する。

(円偏光板を用いる反射型液晶表示装置)

図1は、円偏光板を用いる反射型液晶表示装置の基本的な構成を示す模式図である。

図1に示す反射型液晶表示装置は、下から順に、下基板(1)、反射電極(2)、下配向膜(3)、液晶層(4)、上配向膜(5)、透明電極(6)、上基板(7)、 $\lambda/4$ 板(8)、そして偏光膜(9)からなる。

下基板(1)と反射電極(2)が反射板を構成する。下基板(1)～上基板(7)が液晶セルを構成する。

$\lambda/4$ 板(8)は、反射板と偏光膜(9)との間の任意の位置に配置することができる。 $\lambda/4$ 板(8)と偏光膜(9)とが円偏光板を構成する。

カラー表示の場合には、さらにカラーフィルター層を設ける。カラーフィルター層は、反射電極(2)と下配向膜(3)との間、または上配向膜(5)と透明電極(6)との間に設けることが好ましい。

図1に示す反射電極(2)の代わりに透明電極を用いて、別に反射板を取り付けてもよい。透明電極と組み合わせて用いる反射板としては、金属板が好ましい。反射板の表面が平滑であると、正反射成分のみが反射されて視野角が狭くなる場合がある。そのため、反射板の表面に凹凸構造(特許275620号公報記載)を導入することが好ましい。反射板の表面が平坦である場合は(表面に凹凸構造を導入する代わりに)、偏光膜の片側(セル側あるいは外側)に光拡散フィルムを取り付けてもよい。

液晶セルは、TN(twisted nematic)型、STN(Supper Twisted Nematic)型またはHAN(Hybrid Aligned Nematic)型であることが好ましい。

TN型液晶セルのツイスト角は、40乃至100°であることが好ましく、50乃至90°であることがさらに好ましく、60乃至80°であることが最も好

ましい。液晶層の屈折率異方性 (Δn) と液晶層の厚み (d) との積 ($\Delta n d$) の値は、 0.1 乃至 $0.5 \mu m$ であることが好ましく、 0.2 乃至 $0.4 \mu m$ であることがさらに好ましい。

STN型液晶セルのツイスト角は、 180 乃至 360° であることが好ましく、 220 乃至 270° であることがさらに好ましい。液晶層の屈折率異方性 (Δn) と液晶層の厚み (d) との積 ($\Delta n d$) の値は、 0.3 乃至 $1.2 \mu m$ であることが好ましく、 0.5 乃至 $1.0 \mu m$ であることがさらに好ましい。

HAN型液晶セルは、片方の基板上では液晶が実質的に垂直に配向しており、他方の基板上のプレチルト角が 0 乃至 45° であることが好ましい。液晶層の屈折率異方性 (Δn) と液晶層の厚み (d) との積 ($\Delta n d$) の値は、 0.1 乃至 $1.0 \mu m$ であることが好ましく、 0.3 乃至 $0.8 \mu m$ であることがさらに好ましい。液晶を垂直配向させる側の基板は、反射板側の基板であってもよいし、透明電極側の基板であってもよい。

反射型液晶表示装置は、印加電圧が低い時に明表示、高い時に暗表示であるノーマリーホワイトモードでも、印加電圧が低い時に暗表示、高い時に明表示であるノーマリーブラックモードでも用いることができる。ノーマリーホワイトモードの方が好ましい。

(タッチパネル)

タッチパネルは、表示素子に近い側の固定基板と、対向する可動基板とからなる。固定基板と可動基板の対向面に、それぞれ透明電極を備えている。固定基板及び可動基板は、表示品質を高めるため、透明な光学材料で形成されていることが好ましい。固定基板と可動基板に用いられる材料としては、例えば、ガラス、非晶性フィルム、ポリマー（例、ポリエーテルサルフォン、ポリカーボネート、ポリアリレート、ポリエチレンテレフタレート、セルロースエステル）のフィルムが挙げられる。本発明に従う $\lambda/4$ 板は、タッチパネルとは別に設けることができる。本発明に従う $\lambda/4$ 板を、固定基板および可動基板のどちらに用いることもできる。また、 $\lambda/4$ 板を、固定基板および可動基板の両方に用いてもよい。本発明に従う $\lambda/4$ 板は、可動基板として用いることが特に好ましい。

二つの透明電極間にはギャップが形成される。ギャップ間には通常空気層が存在するが、オプティカル・マッチングを取るために透明電極と屈折率の近い液体を充填させることもできる。また、透明電極膜の基板側にアンダーコート層、または、基板と反対側にオーバーコート層を付与し、光反射を低減させることもできる。スティッキング性をなくし、打鍵寿命を改善するために、透明電極膜表面は粗面化されていても良い。ギャップ間にはスペーサを設けることができる。スペーサとしては、ドット状スペーサや、固定基板と可動基板との周辺部に設けた貼合せ材が用いられる。

タッチパネルは、デジタル方式あるいはアナログ方式で用いられる。デジタル方式では、押圧による透明電極同士の接触と、接触位置に対応してデータ位置を検出することができる。アナログ式では、例えば、固定基板のX軸方向の両端部、および、可動基板のY軸方向の両端部に電極を形成し、押圧により透明電極同士が接触し、接触位置により生じるX方向、Y方向の抵抗値を検出することによって、データ入力位置を検出することができる。

タッチパネルは表示素子と共に用いられることが好ましい。タッチパネル部が表示部とは別々になっていてもよい。タッチパネルと表示素子とを一体にすることもできる。

タッチパネルを偏光板とともに用いる場合、偏光板をタッチパネルと表示素子との間に配置することができる。また、偏光板をタッチパネルの外側（観察者側）に設けられる構成（インナータイプ）も可能である。本発明では、外光の反射が低減でき防眩性に優れるインナータイプとして構成する方が好ましい。

（透明導電膜）

タッチパネルに用いる透明導電膜は、表面抵抗率は、 $10^4 \Omega/\square$ 以下であることが好ましく、 $1000 \Omega/\square$ 以下であることがさらに好ましい。

本発明に従う1/4板の少なくとも一方の面に透明導電膜を設け、インナータイプのタッチパネルとして用いることが特に好ましい。

透明導電膜の表面抵抗率を上記のような値にするため、導電性微粒子分散物や金属アルコキシドの塗布により、透明導電膜を設けることができる。透明導電膜

は、フィルムと共流延することによって設けることもできる。また、真空成膜法（例、スパッタリング、真空蒸着法、イオンプレーティング法、CVD法）により、透明導電膜を形成することもできる。さらに、大気圧での気相成長法によって透明導電膜を形成することもできる。

一般には、フィルムの片面に透明導電膜を設けるが、フィルムの両面に設けてもよい。

導電性微粒子分散物を塗布する方法としては、基本的には少なくとも一種以上の金属および／または金属酸化物、金属窒化物からなる微粒子を含有する層からなる。一種以上の金属からなる微粒子としては、金属（例、金、銀、銅、アルミニウム、鉄、ニッケル、パラジウム、プラチナ）あるいはこれらの合金が挙げられる。特に銀が好ましく、さらに耐候性の観点からパラジウムと銀の合金が好ましい。パラジウムの含有量は、5乃至30質量%であることが好ましく、パラジウムが少ないと耐候性が悪く、パラジウムが多くなると導電性が低下する。金属微粒子の作製方法としては、低真空蒸発法による微粒子の作製方法や金属塩の水溶液を、鉄（II）、ヒドラジン、ボロンハイドライド、アミン（例、ヒドロキシエチルアミン）のような還元剤で還元する金属コロイド作製方法が挙げられる。

金属酸化物としては In_2O_3 系（Snをドーブしたものを含む）、 SnO_2 系（F、Sbをドーブしたものを含む）、 ZnO 系（Al、Gaをドーブしたものを含む）、 TiO_2 、 Al_2O_3 、 SiO_2 、 MgO 、 BaO 、 MoO_3 、 V_2O_5 、およびこれらの複合品が挙げられる。金属窒化物の例には、 TiN が含まれる。

導電性微粒子の平均粒径は、1.0～700nmであることが好ましく、2.0～300nmであることが更に好ましく、5.0～100nmであることが最も好ましい。粒径が大きすぎると、導電性微粒子による光の吸収が大きくなり、このために粒子層の光透過率が低下すると同時にヘイズが大きくなり、また、これら導電性微粒子の平均粒径が1nm未満の場合には微粒子の分散が困難になること、微粒子層の表面抵抗が急激に大きくなるため、本発明の目的を達成しうる程度の低抵抗値を有する被膜を得ることができない。

導電性微粒子層の形成は、導電性微粒子を水を主体とする溶液あるいは有機溶

剤に分散した塗料を塗布して作製することができる。塗布する前に、表面処理や下塗りを施すことができる。表面処理としては、例えばコロナ放電処理、グロー放電処理、クロム酸処理（湿式）、火炎処理、熱風処理、オゾン・紫外線照射処理が挙げられる。下塗り層の素材の例には、塩化ビニル、塩化ビニリデン、ブタジエン、（メタ）アクリル酸エステル、ビニルエステル、およびそれらの共重合体、ラテックス、あるいは水溶性ポリマー（ゼラチン）が含まれる。導電性微粒子の分散安定化のためには水を主体とする溶液が好ましく、水と混合できる溶剤としては、アルコール（例、エチルアルコール、*n*-プロピルアルコール、*i*-プロピルアルコール、ブチルアルコール、メチルセルソルブ、ブチルセルソルブ）が好ましい。導電性微粒子の塗布量としては、10乃至1000 mg/m² が好ましく、20乃至500 mg/m² がさらに好ましく、50～150 mg/m² が最も好ましい。塗布量が少ないと導電性が取れず、塗布量が多いと透過性が劣る。

透明導電層は、バインダーを含有することができる。透明導電層がバインダーを含有せず、実質的に導電性微粒子のみから層を形成することもできる。バインダーは、親水性バインダー、疎水性バインダー、あるいは、ラテックスから構成できる。

親水性バインダーの例には、ゼラチン、ゼラチン誘導体、寒天、アルギン酸ソーダ、でんぷん、ポリビニルアルコール、ポリアクリル酸共重合体、無水マレイン酸共重合体、カルボキシメチルセルロース、カルボキシエチルセルロース、ヒドロキシメチルセルロース、ヒドロキシエチルセルロースが含まれる。疎水性バインダーの例には、セルロースエステル（例えば、ニトロセルロース、ジアセチルセルロース、トリアセチルセルロース、メチルセルロース）、ビニル系ポリマー（例、塩化ビニル、塩化ビニリデン、ビニルアクリレート）、ポリアミド、ポリエステルが含まれる。

透明導電性層の導電性や透過性の向上のため、熱処理や水処理することができる。熱処理は、ポリマーフィルムの耐熱性によるが、150℃以下が好ましい。100℃から150℃が好ましい。150℃以上ではポリマーフィルムの熱による変形が起こりやすく、100℃以下では熱処理の効果が出難く、長時間の処理

時間が必要になってしまう。

熱処理の方法は、ウェーブ状態で加熱ゾーンを通しながら処理することが均一な処理ができて好ましい。加熱ゾーンの長さや搬送速度で滞在時間を調節することができる。またロール状のフィルムを恒温槽中で加熱することも可能であるが、熱伝導のバラツキを考慮した時間設定が必要になる。

また、熱処理に先立ち、透明導電性層を水処理（例えば、水洗）をすることで熱処理をさらに効率良くすることができる。水処理は、通常の塗布方式による水だけの塗布、具体的にはディップコート塗布、ワイヤーバーによる水の塗布があり、他にはスプレーやシャワーで水を透明導電性層に掛ける方法がある。透明導電性層に水をかけた後、過剰の水は必要に応じて、ワイヤーバー、ロッドバーで掻き取ったり、エアークレイフで掻き取ることができる。

これらの水処理により、熱処理後の透明導電性層の表面抵抗をさらに低下させることができ、加えて透過率の増加、透過スペクトルの平坦化、反射防止層を積層した後の反射率の低下に対する効果が顕著になる。

真空成膜法としては、「透明導電膜の新展開」シーエムシー、澤田豊監修「月刊ディスプレイ」1999年9月号に記載の方法を用いることができる。

成膜する金属酸化物としては、 In_2O_3 系（Snをドーピングしたもの、ITO含む）、 SnO_2 系（F、Sbをドーピングしたものを含む）、 ZnO 系（Al、Gaをドーピングしたものを含む）またはこれらの複合品（例えば、 In_2O_3 - ZnO 系）が挙げられる。金属窒化物の例には、TiNが含まれる。

また、銀と共に成膜しても良い。

スパッタリングでポリマーフィルム上に成膜する際にはその表面を高分子（例、フッ素系樹脂、アクリル系樹脂、シリコン系樹脂、プロピレン系樹脂、ビニル系樹脂）や、無機物（例、 SiO_2 、 TiO_2 、 ZrO_2 、 SnO_2 ）でコートすることが好ましい。コートする膜厚としては、2nm以上100μm以下が好ましく、さらに好ましくは2nm以上50μm以下であり、特に好ましくは2nm以上10μm以下である。スパッタ法により酸化インジウムを主として含む膜を成膜する方法としては、インジウムを主成分とする金属ターゲット、または酸化インジウムを主成分とする焼結体であるターゲットを用いた反応性スパッタリ

ングを行うことができる。反応の制御上、後者が好ましい。反応性スパッタリング法においてはスパッタリングガスとしては、不活性ガス（例、アルゴン）を用い、反応性ガスとしては酸素を用いる。放電形式としてはDCマグネトロンスパッタ、RFマグネトロンスパッタが利用できる。また、酸素の流量を制御する方法としてはプラズマエミッションモニター法で行うことが好ましい。

透明導電層を付与したポリマーフィルムの光の透過率は、50%以上であることが好ましく、60%以上であることがさらに好ましく、70%以上であることが特に好ましく、80%以上であることが最も好ましい。

透明導電層の厚みは、ITOを用いた場合を例にとると、例えば10～100nm、特に15～70nmとすることが多い。透明導電層は、全面を電極としたり、全面電極形成後にレジスト形成およびエッチングを行なってパターン電極としたりし、透明導電膜が設けられたフィルム状のシートを得る。

タッチパネルを作製するときは、一般に、上記シートと相手方の透明導電性シート（ガラスを含む）とを、それら二枚のシートの透明導電層側を対向させると共に、両シート間に、例えば、0.02～1.0mm程度の厚みのドット・スペーサーを介在させればよい。相手方の透明導電性シートとしては、ポリマーフィルムをであってもよく、他の適当な透明導電性シートであってもよく、導電層付きのガラスであってもよい。すなわち本発明においては、対向する二枚の透明導電性シートのうち少なくとも一方の透明導電性シートとして、上記の透明導電性シートを用いる。このようにして得たタッチパネルは、液晶表示素子の入射光側の偏光板の下に設置され、インナータイプとして使用できる。

（タッチパネルを用いる反射型液晶表示装置）

タッチパネルは、様々な表示装置と組合せて用いることができる。表示装置の例には、カソードレイチューブ（CRT）、プラズマディスプレイ（PDP）、フィールド・エミッション・ディスプレイ（FED）、無機ELデバイス、有機ELデバイスおよび液晶表示装置がフィ生まれる。本発明に従う位相差板や円偏光板を用いることで、これらの表示装置の外光の反射を低減することができる。タッチパネルは、液晶表示装置と組合せて用いることが好ましく、特に反射型液

晶表示装置に用いるのが好ましい。

図2は、タッチパネルを用いる反射型液晶表示装置の基本的な構成を示す模式図である。

図2に示すインナー型タッチパネルを用いた反射型液晶表示装置は、下から順に、下基板(1)、反射電極(2)、下配向膜(3)、液晶層(4)、上配向膜(5)、透明電極(6)、上基板(7)、透明導電膜(10)、透明導電膜(11)、 $\lambda/4$ 板(8)、そして偏光板(9)からなる。下基板(1)～上基板(7)が液晶セルとして機能する。透明導電膜(10)と透明導電膜(11)の間にはギャップが形成され、透明導電膜(10)～偏光板(9)がインナー型タッチパネルとして機能する。なお、図2に示す装置では、上基板(7)が透明導電膜が形成されたタッチパネル用の固定基板を兼用している。

図3は、タッチパネルを用いる反射型液晶表示装置の別の基本的な構成を示す模式図である。

図3に示すインナー型タッチパネルを用いた反射型液晶表示装置は、下から順に下基板(1)、反射電極(2)、下配向膜(3)、液晶層(4)、上配向膜(5)、透明電極(6)、上基板(7)、固定基板(12)、透明導電膜(10)、透明導電膜(11)、 $\lambda/4$ 板(8)、そして偏光板(9)からなる。下基板(1)～上基板(7)が液晶セルとして機能する。透明導電膜(10)と透明導電膜(11)の間にはギャップが形成され、固定基板(12)～偏光板(9)がインナー型タッチパネルとして機能する。

用いられる液晶モードは、TN (twisted nematic) 型、STN (Super Twisted Nematic) 型、HAN (Hybrid Aligned Nematic) 型、または、GH (Guest Host) 型であることが好ましい。

TN型液晶セルのツイスト角は、 40 乃至 100° であることが好ましく、 50 乃至 90° であることがさらに好ましく、 60 乃至 80° であることが最も好ましい。液晶層の屈折率異方性(Δn)と液晶層の厚み(d)との積($\Delta n d$)の値は、 0.1 乃至 $0.5 \mu\text{m}$ であることが好ましく、 0.2 乃至 $0.4 \mu\text{m}$ であることがさらに好ましい。

STN型液晶セルのツイスト角は、 180 乃至 360° であることが好ましく

、 220 乃至 270° であることがさらに好ましい。液晶層の屈折率異方性 (Δn) と液晶層の厚み (d) との積 ($\Delta n d$) の値は、 0.3 乃至 $1.2 \mu\text{m}$ であることが好ましく、 0.5 乃至 $1.0 \mu\text{m}$ であることがさらに好ましい。

HAN型液晶セルは、片方の基板上では液晶が実質的に垂直に配向しており、他方の基板上のプレチルト角が 0 乃至 45° であることが好ましい。液晶層の屈折率異方性 (Δn) と液晶層の厚み (d) との積 ($\Delta n d$) の値は、 0.1 乃至 $1.0 \mu\text{m}$ であることが好ましく、 0.3 乃至 $0.8 \mu\text{m}$ であることがさらに好ましい。液晶を垂直配向させる側の基板は、反射板側の基板であってもよいし、透明電極側の基板であってもよい。

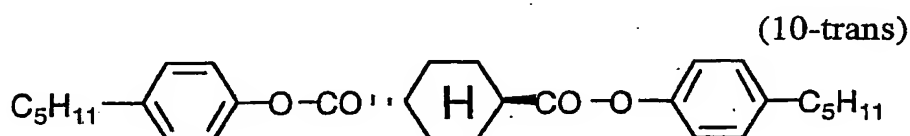
GH型液晶セルは、液晶層が液晶と二色性色素との混合物からなる。液晶、二色性色素ともに棒状の化合物の場合、液晶のディレクタと二色性色素の長軸方向が平行となる。電圧の印加によって液晶の配向状態が変化すると、二色性色素も液晶と同様に長軸方向が変化する。GH型液晶セルには、Heilmair型や、コレステリック液晶を用いたWhite-Taylor型、二層型、 $\lambda/4$ 板を用いた方式が知られているが、本発明においては、 $\lambda/4$ 板を用いた方式を用いるのが好ましい。 $\lambda/4$ 板を備えたゲストホスト反射型液晶表示素子については、特開平6-222350号、同8-36174号、同10-268300号、同10-292175号、同10-293301号、同10-311976号、同10-319442号、同10-325953号、同10-333138号、同11-38410号の各公報に記載がある。 $\lambda/4$ 板は、液晶層と反射板との間に設けられる。液晶層は、水平配向よりも垂直配向を用いるのが好ましい。液晶の誘電率異方性は負であることが好ましい。

反射型液晶表示装置は、印加電圧が低い時に明表示、高い時に暗表示であるノーマリーホワイトモードでも、印加電圧が低い時に暗表示、高い時に明表示であるノーマリーブラックモードでも用いることができる。ノーマリーホワイトモードの方が好ましい。

[実施例1]

(セルロースエステルフィルムの作成)

室温において、平均酢化度 59.7% のセルロースアセテート 120 質量部、添加剤 (10-trans) 2.4 質量部、トリフェニルホスフェート 9.36 質量部、ビフェニルジフェニルホスフェート 4.68 質量部、トリベンジルアミン 2.4 質量部、メチレンクロリド 71.8 質量部、メタノール 62.4 質量部を混合して、溶液 (ドープ) を調製した。



得られたドープを、ガラス板上に流延して、室温にて 1 分間乾燥後、45℃にて 5 分間乾燥させた。セルロースアセテートフィルムをガラス板から剥離し、100℃で 30 分間乾燥させ、130℃で 20 分間乾燥させた。乾燥後の溶媒残存量は、0.5 質量% であった。

フィルムを適当な大きさに切断した後、130℃で流延方向と平行な方向に 1.33 倍の長さに延伸した。延伸方向と垂直な方向は自由に収縮できるようにした。流延後そのままの状態を室温まで冷却し、延伸フィルムを取り出した。延伸後の溶媒残存量は 0.1 質量% であったこのようにして得られたフィルムの厚さは、102 μm であった。また、延伸倍率の比 (SA/SB) は 1.48 であった。

得られたセルロースエステルフィルム (位相差板) について、エリプソメーター (M-150, 日本分光 (株) 製) を用いて、波長 450 nm、550 nm、590 nm におけるレターデーション値 (Re) を測定したところそれぞれ、111.6 nm、137.3 nm、および 145.2 nm であった。

さらに、アッベ屈折率計による屈折率測定と、レターデーションの角度依存性の測定から、波長 550 nm における面内の遅相軸の屈折率 n_x 、面内の遅相軸に

直交する方向の屈折率 n_y 、および厚み方向の屈折率 n_z を求め、 $(n_x - n_z) / (n_x - n_y)$ を求めたところ、1.50であった。

(反射型液晶表示装置の作製)

市販の反射型液晶表示装置 (カラーザウルス MI-310, シャープ (株) 製) の偏光板と位相差板を剥ぎとり、代わりに上記で作製した位相差板と偏光板 (表面がAR処理された保護膜を積層した偏光板) を取り付けた。

作製した反射型液晶表示装置について、目視で評価したところ、白表示、黒表示、そして中間調のいずれにおいても、色味がなく、ニュートラルグレーが表示されていることがわかった。

次に、測定機 (EZ contrast160D、Eldim 社製) を用いて反射輝度のコントラスト比を測定したところ、正面からのコントラスト比は20であり、コントラスト比が3となる視野角は、上下、左右、いずれも120°以上であった。

(添加剤のスペクトル測定)

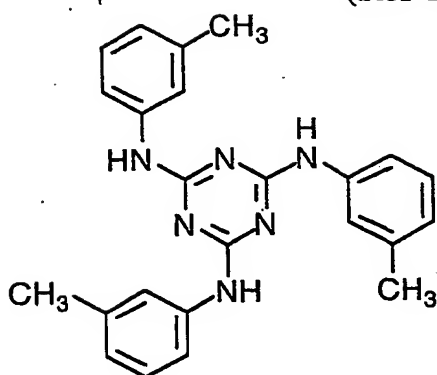
添加剤 (10-trans) の紫外-可視領域 (UV-vis) スペクトルを測定した。

添加剤 (10-trans) をテトラヒドロフラン (安定剤 (BHT) なし) に溶解し、濃度が $1.0 \times 10^{-5} \text{ mol/dm}^3$ になるように調整した。このように調整した溶液を測定機 (日立製作所 (株) 製) で測定したところ、吸収極大を与える波長 (λ_{max}) は220nmであり、そのときの吸光係数 (ϵ) は15000であった。

[比較例1]

添加剤 (10-trans) に代えて、下記添加剤 (Ref-1) 1.2質量部を用いた以外は、実施例1と同様な方法にてセルロースエステルフィルム (位相差板) および反射型液晶表示装置を作製した。

(Ref-1)



(位相差板の評価)

得られたフィルム（位相差板）について、エリプソメーター（M-150，日本分光（株）製）を用いて、波長450nm、550nm、590nmにおけるレターデーション値（Re）を測定したところそれぞれ、109.4nm、125.3nmおよび130.2nmであった。

さらに、アッペ屈折率計による屈折率測定と、レターデーションの角度依存性の測定から、波長550nmにおける面内の遅相軸の屈折率 n_x 、面内の遅相軸に直交する方向の屈折率 n_y 、および厚み方向の屈折率 n_z を求め、 $(n_x - n_z) / (n_x - n_y)$ を求めたところ、1.90であった。

(反射型液晶表示装置の評価)

作製した反射型液晶表示装置について、目視で評価したところ、白表示ではやや黄色味が、黒表示ではやや青色味が認められた。そして中間調のいずれにおいても、若干色味があり、ニュートラルグレーとはいえなかった。

(添加剤のスペクトル測定)

添加剤（Ref-1）の紫外-可視領域（UV-vis）スペクトルを測定した。

添加剤（Ref-1）をテトラヒドロフラン（安定剤（BHT）なし）に溶解

し、濃度が $1.0 \times 10^{-5} \text{ mol/dm}^3$ になるように調整した。このように調整した溶液を測定機（日立製作所（株）製）で測定したところ、吸収極大を与える波長（ λ_{max} ）は 280 nm であり、そのときの吸光係数（ ϵ ）は 60000 であった。

[実施例 2]

添加剤（10-trans）に代えて、添加剤（23-trans）を第1表に示す量で用いた以外は、実施例1と同様にセルロースエステルフィルム（位相差板）を作製し、レターデーションを測定した。結果を第1表に示す。

[実施例 3]

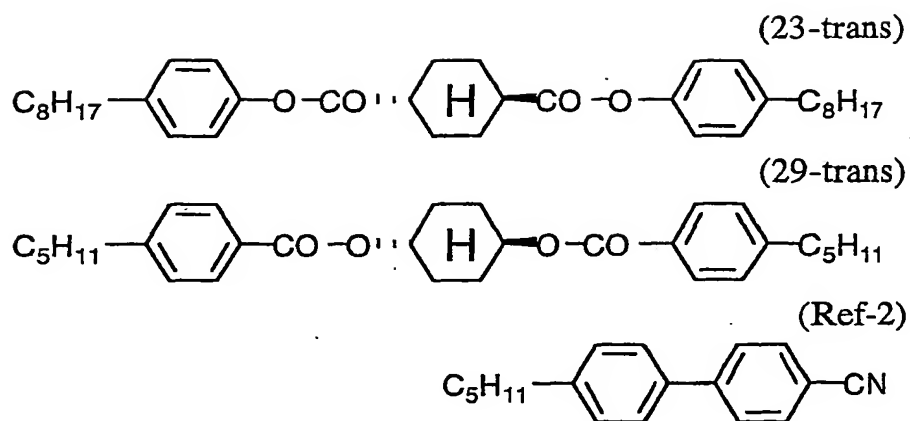
添加剤（10-trans）に代えて、添加剤（29-trans）を第1表に示す量で用いた以外は、実施例1と同様にセルロースエステルフィルム（位相差板）を作製し、レターデーションを測定した。結果を第1表に示す。

[比較例 2]

添加剤（10-trans）に代えて、添加剤（Ref-1）を第1表に示す量で用いた以外は、実施例1と同様にセルロースエステルフィルム（位相差板）を作製し、レターデーションを測定した。結果を第1表に示す。

[比較例 3]

添加剤（10-trans）に代えて、添加剤（Ref-2）を第1表に示す量で用いた以外は、実施例1と同様にセルロースエステルフィルム（位相差板）を作製し、レターデーションを測定した。結果を第1表に示す。



第1表 (その1)

フィルム	添加剤	添加量	吸収極大波長	吸光係数 (ϵ)
実施例 1	10-trans	1.8 質量部	220 nm	15000
実施例 2	23-trans	2.3 質量部	230 nm	16000
実施例 3	29-trans	2.0 質量部	240 nm	20000
比較例 1	Ref-1	1.2 質量部	280 nm	60000
比較例 2	Ref-1	1.8 質量部	280 nm	60000
比較例 3	Ref-2	1.6 質量部	280 nm	60000

第1表 (その2)

フィルム	レターデーション			色味
	450 nm	550 nm	590 nm	
実施例1	111.6 nm	137.3 nm	146.2 nm	A
実施例2	112.6 nm	137.5 nm	144.2 nm	A
実施例3	113.6 nm	137.6 nm	143.1 nm	A
比較例1	109.4 nm	125.3 nm	130.2 nm	C
比較例2	120.6 nm	137.2 nm	140.2 nm	B
比較例3	122.4 nm	137.1 nm	141.0 nm	B
$\lambda/4$ 理論値	112.5 nm	137.5 nm	147.5 nm	

註 (色味)

A : 白表示、黒表示、中間調のいずれでも色味が認められなかった。

B : 黒表示で青味が、白表示ではやや黄味が認められた。

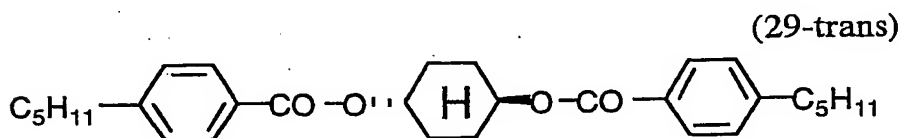
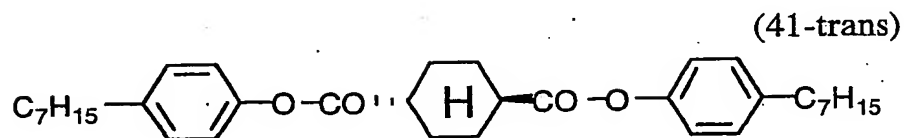
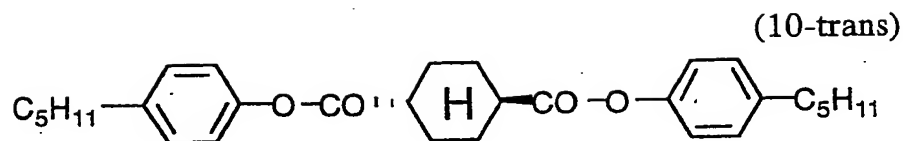
C : 白表示、黒表示、中間調のいずれでも色味が認められ、コントラストも低かった。

[予備実験1]

(レターデーション上昇剤のスペクトル測定)

レターデーション上昇剤 (10-trans) ; (41-trans) および (29-trans) の紫外-可視領域 (UV-vis) スペクトルを測定した。

レターデーション上昇剤をテトラヒドロフラン (安定剤 (BHT) なし) に溶解し、濃度が 10^{-5} mol/dm^3 になるように調整した。このように調製した溶液を測定機 (日立製作所 (株) 製) で測定した。結果を第2表に示す。



第2表

レターデーション上昇剤 吸収極大波長 (λ_{\max}) 吸収極大での吸光係数 (ϵ)

10-trans	220 nm	15000
41-trans	230 nm	16000
29-trans	240 nm	20000

[実施例 4]

(ポリマーフィルムの作製)

室温において、平均酢化度 59.5% のセルロースアセテート 100 質量部、トリフェニルホスフェート 7.8 質量部、ビフェニルジフェニルホスフェート 3.9 質量部、レターデーション上昇剤 (41-trans) 1.32 質量部、メチレンクロリド 587.69 質量部、メタノール 50.85 質量部を混合して、溶液 (ドープ) を調製した。

得られたドープを、製膜バンド上に流延し、室温で 1 分間乾燥後、45℃ で 5 分間乾燥させた。乾燥後の溶剤残留量は 30 質量% であった。セルロースアセテートフィルムをバンドから剥離し、120℃ で 10 分間乾燥した後、130℃ で流延方向とは平行な方向に実倍で 1.34 倍に延伸した。延伸方向と垂直な方向は、自由に収縮できるようにした。延伸後、120℃ で 30 分間乾燥した後、延伸フィルムを取り出した。延伸後の溶剤残留量は 0.1 質量% であった。

得られたポリマーフィルムフィルム (PF-1) の厚さは、112.7 μm であり、エリプソメーター (M-150、日本分光 (株) 製) を用いて、波長 450 nm、550 nm および 590 nm におけるレターデーション値 (Re) を測定したところ、それぞれ、125.2 nm、137.8 nm および 141.1 nm であった。従って、このセルロースアセテートフィルムは、広い波長領域で $\lambda/4$ を達成していた。

さらに、アッベ屈折率計による屈折率測定と、レターデーションの角度依存性の測定から、波長 550 nm における面内の遅相軸方向の屈折率 n_x 、面内の遅相軸に垂直な方向の屈折率 n_y および厚み方向の屈折率 n_z を求め、 $(n_x - n_z) / (n_x - n_y)$ の値を計算したところ、1.48 であった。

[実施例 5]

(ポリマーフィルムの作製)

室温において、平均酢化度 59.5% のセルロースアセテート 100 質量部、レターデーション上昇剤 (10-trans) 2.35 質量部、トリフェニルホスフェート 7.8 質量部、ビフェニルジフェニルホスフェート 3.9 質量部、メチレン

クロリド594.61質量部、メタノール52.14質量部を混合して、溶液（ドープ）を調製した。

得られたドープを、製膜バンド上に流延し、室温で1分間乾燥後、45℃で5分間乾燥させた。乾燥後の溶剤残留量は30質量%であった。セルロースアセテートフィルムをバンドから剥離し、120℃で5分間乾燥した後、130℃で流延方向と平行な方向に実倍で1.3倍に延伸した。延伸方向と垂直な方向は、自由に収縮できるようにした。延伸後、130℃で20分間乾燥した後、延伸フィルムを取り出した。延伸後の溶剤残留量は0.1質量%であった。

得られたポリマーフィルム（PF-2）の厚さは、100.1 μ mであり、エリプソメーター（M-150、日本分光（株）製）を用いて、波長450nm、550nmおよび590nmにおけるレターデーション値（Re）を測定したところ、それぞれ、130.1nm、141.0nmおよび143.8nmであった。従って、このセルロースアセテートフィルムは、広い波長領域で $\lambda/4$ を達成していた。

さらに、アッペ屈折率計による屈折率測定と、レターデーションの角度依存性の測定から、波長550nmにおける面内の遅相軸方向の屈折率 n_x 、面内の遅相軸に垂直な方向の屈折率 n_y および厚み方向の屈折率 n_z を求め、 $(n_x - n_z) / (n_x - n_y)$ の値を計算したところ、1.47であった。

[実施例6]

（ポリマーフィルムの作製）

室温において、平均酢化度60.9%のセルロースアセテート100質量部、実施例4で用いたレターデーション上昇剤（41-trans）2.25質量部、トリフェニルホスフェート7.8質量部、ビフェニルジフェニルホスフェート3.9質量部、メチレンクロリド594.02質量部、メタノール51.49質量部を混合して、溶液（ドープ）を調製した。

得られたドープを、製膜バンド上に流延し、室温で1分間乾燥後、45℃で5分間乾燥させた。乾燥後の溶剤残留量は30質量%であった。セルロースアセテートフィルムをバンドから剥離し、120℃で5分間乾燥した後、130℃で流

延方向と平行な方向に実倍で1.34倍に延伸した。延伸方向と垂直な方向は、自由に収縮できるようにした。延伸後、130℃で20分間乾燥した後、延伸フィルムを取り出した。延伸後の溶剤残留量は0.1質量%であった。

得られたポリマーフィルム(PF-3)の厚さは、119.5μmであり、エリプソメーター(M-150、日本分光(株)製)を用いて、波長450nm、550nmおよび590nmにおけるレターデーション値(Re)を測定したところ、それぞれ、127.1nm、140.1nmおよび143.5nmであった。従って、このセルロースアセテートフィルムは、広い波長領域でλ/4を達成していた。

さらに、アッペ屈折率計による屈折率測定と、レターデーションの角度依存性の測定から、波長550nmにおける面内の遅相軸方向の屈折率 n_x 、面内の遅相軸に垂直な方向の屈折率 n_y および厚み方向の屈折率 n_z を求め、 $(n_x - n_z) / (n_x - n_y)$ の値を計算したところ、1.32であった。

[実施例7]

(ポリマーフィルムの作製)

平均酢化度61.5%のセルロースアセテート100質量部、トリフェニルホスフェート7.8質量部、ビフェニルジフェニルホスフェート3.9質量部、メチレンクロリド594.02質量部、メタノール51.49質量部をミキシングタンクに投入し、加熱しながら攪拌して、各成分を溶解し、セルロースアセテート溶液を調製した。

別のミキシングタンクに、実施例1で用いたレターデーション上昇剤(41-trans)2.25質量部、メチレンクロライド16.0質量部およびメタノール1.39質量部を投入し、加熱しながら攪拌して、レターデーション上昇剤溶液を調製した。

セルロースアセテート溶液にレターデーション上昇剤溶液を全て投入し、充分に攪拌してドープを調製した。

得られたドープを、流延後の乾燥ゾーンに多段ロール延伸ゾーンを設けたバンド流延機を用いて流延・一軸延伸をおこなった。延伸ゾーン直前のフィルムの残

留溶剂量は2.0%であった。延伸ゾーンは温度を均一に保つためケーシングで覆い、膜面上で130℃になるようにした。また、フィルムの延伸温度はロールの温度、ロール間に設けた赤外線ヒータで調節した。延伸倍率はロールの回転速度を調節することにより1.31倍とした。延伸後のフィルムは室温まで徐冷し、巻き取った。

得られたフィルムの膜厚は145 μm であった。また、残留溶剂量は0.2%であった。

エリプソメーター (M-150、日本分光 (株) 製) を用いて、波長450 nm、550 nmおよび590 nmにおけるレターデーション値 (Re) を測定したところ、それぞれ、126.8 nm、137.8 nmおよび140.74 nmであった。従って、このセルロースアセテートフィルムは、広い波長領域で $\lambda/4$ を達成していた。

さらに、アッペ屈折率計による屈折率測定と、レターデーションの角度依存性の測定から、波長550 nmにおける面内の遅相軸方向の屈折率 n_x 、面内の遅相軸に垂直な方向の屈折率 n_y および厚み方向の屈折率 n_z を求め、 $(n_x - n_z) / (n_x - n_y)$ の値を計算したところ、1.47であった。

[比較例4]

($\lambda/4$ 板の作製)

質量平均分子量10万のポリカーボネートを塩化メチレンに溶解して、17質量%溶液を得た。この溶液をガラス板上に、乾燥膜厚が80 μm となるように流延し、室温で30分乾燥後、70℃で30分乾燥した。ポリカーボネートフィルム (揮発分: 約1質量%) をガラス板から剥離し、5 cm \times 10 cmのサイズに裁断した。158℃で一軸延伸し、ポリカーボネートの延伸複屈折フィルムを得た。

得られたポリカーボネートフィルム ($\lambda/4$ 板) について、エリプソメーター (M-150、日本分光 (株) 製) を用いて、波長450 nm、550 nmおよび590 nmにおけるレターデーション値 (Re) を測定したところ、それぞれ、147.8 nm、137.5 nmおよび134.9 nmであった。

[実施例 8]

(偏光膜の作製)

平均重合度 4000、ケン化度 99.8 モル% のポリビニルアルコールを水に溶解し、4.0% の水溶液を得た。この溶液をバンド流延、乾燥し、バンドから剥ぎ取り、ドライで流延方向に延伸してそのままヨウ素 0.5 g/l、ヨウ化カリウム 50 g/l の水溶液中に 30℃ にて 1 分間浸漬し、次いでホウ酸 100 g/l、ヨウ化カリウム 60 g/l の水溶液中に 70℃ にて 5 分間浸漬し、さらに水洗層で 20℃、10 秒間水洗して、さらに 80℃ で 5 分間乾燥して長尺偏光膜 (CHM-1) を得た。フィルムは幅 1290 mm、厚みは 20 μ m であった。

(円偏光板の作製)

実施例 6 で作製したセルロースアセテートフィルムを市販の偏光板 (サンリツ製) と該フィルムの遅相軸と該偏光板の透過軸が 45 度となるように粘着剤で貼り合わせて円偏光板を得た。

得られた円偏光板の光学的性質を調べたところ、いずれも広い波長領域 (450 ~ 590 nm) において、ほぼ完全な円偏光が達成されていた。

[実施例 9]

(偏光膜の作製)

平均重合度 4000、ケン化度 99.8 mol% のポリビニルアルコールを水に溶解し、4.0% の水溶液を得た。この溶液をバンド流延、乾燥し、バンドから剥ぎ取り、ドライで流延方向に延伸してそのままヨウ素 0.5 g/l、ヨウ化カリウム 50 g/l の水溶液中に 30℃ にて 1 分間浸漬し、次いでホウ酸 100 g/l、ヨウ化カリウム 60 g/l の水溶液中に 70℃ にて 5 分間浸漬し、さらに水洗層で 20℃、10 秒間水洗して、さらに 80℃ で 5 分間乾燥して長尺偏光膜 (CHM-1) を得た。フィルムは幅 1290 mm、厚みは 20 μ m であった。

(円偏光板の作製)

実施例 6 で作製したセルロースアセテートフィルムおよび上記のように作製された偏光膜、および市販のセルロースアセテートフィルム（フジタック 富士写真フィルム製）をこの順にロール to ロールで積層して円偏光板を得た。

得られた円偏光板の光学的性質を調べたところ、いずれも広い波長領域（450～590 nm）において、ほぼ完全な円偏光が達成されていた。

[実施例 10]

(TN型反射型液晶表示装置の作製)

ITO 透明電極を設けたガラス基板と、微細な凹凸が形成されたアルミニウム反射電極を設けたガラス基板とを用意した。二枚のガラス基板の電極側に、それぞれポリイミド配向膜（SE-7992、日産化学（株）製）を形成し、ラビング処理を行った。3.4 μm のスペーサーを介して、二枚の基板を配向膜が向かい合うように重ねた。二つの配向膜のラビング方向は、 110° の角度で交差するように、基板の向きを調節した。基板の間に、液晶（MLC-6252、メルク社製）を注入し、液晶層を形成した。このようにして、ツイスト角が 70° 、 $\Delta n d$ の値が 269 nm の TN 型液晶セルを作製した。

ITO 透明電極を設けたガラス基板の側に、実施例 8 で作製した円偏光板（表面が AR 処理された保護膜を積層した偏光膜）をセルロースアセテートフィルム側から貼り付けた。

作製した反射型液晶表示装置に、1 kHz の矩形波電圧を印加した。白表示 1.5 V、黒表示 4.5 V として目視で評価を行ったところ、白表示においても、黒表示においても、色味がなく、ニュートラルグレイが表示されていることが確認できた。

次に、測定機（EZ contrast160D、Eldim 社製）を用いて反射輝度のコントラスト比を測定したところ、正面からのコントラスト比が 25 であり、コントラスト比 3 となる視野角は、上下 120° 以上、左右 120° 以上であった。また、 60°C 90% RH 500 時間の耐久テストでも表示上、何の問題も発生しなかった。

[実施例 11]

(STN型反射型液晶表示装置の作製)

I TO透明電極を設けたガラス板と、平坦なアルミニウム反射電極を設けたガラス基板とを用意した。二枚のガラス基板の電極側に、それぞれポリイミド配向膜 (SE-150、日産化学 (株) 製) を形成し、ラビング処理を行った。6.0 μ m のスペーサを介して二枚の基板を配向膜が向かい合うように重ねた。二つの配向膜のラビング方向は、60° の角度で交差するように、基板の向きを調節した。基板の隙間に、液晶 (ZLI-2977、メルク社製) を注入し、液晶層を形成した。このようにしてツイスト角が240°、 $\Delta n d$ の値が791 nm のSTN型液晶セルを作製した。

I TO透明電極を設けたガラス基板の側に、内部拡散シート (IDS、大日本印刷 (株) 製) と、実施例 8 で作製した円偏光板を、この順序でそれぞれ粘着を介して、偏光板が最外層となるように貼り付けた。

作製した反射型液晶表示装置に、55 Hz の矩形波電圧を印加した。黒表示 2.0 V、白表示 2.5 V として目視で評価を行ったところ、白表示においても黒表示においても、色味がなく、ニュートラルグレイが表示されていることが確認できた。

次に測定器 (EZ contrast160D、Eldim社製) を用いて反射輝度のコントラスト比を測定したところ、正面からのコントラスト比が8であり、コントラスト比3となる視野角は、上下90°、左右105°であった。

[実施例 12]

(HAN型反射型液晶表示装置の作製)

I TO透明電極を設けたガラス基板と、平坦なアルミニウム反射電極を設けたガラス基板とを用意した。I TO透明電極を設けたガラス基板の電極側に、ポリイミド配向膜 (SE-610、日産化学 (株) 製) を形成し、ラビング処理を行った。アルミニウム反射電極を設けたガラス基板の電極側に垂直配向膜 (SE-1211、日産化学 (株) 製) を形成した。アルミニウム反射電極上の配向膜に

はラビング処理を行わなかった。4. $0\ \mu\text{m}$ のスペーサを介して二枚の基板を配向膜が向かい合うように重ねた。基板の隙間に、液晶（ZLI-1565、メルク社製）を注入し、液晶層を形成した。このようにして $\Delta n d$ の値が 519nm のHAN型液晶セルを作製した。

ITO透明電極を設けたガラス基板の側に、実施例8で作製した円偏光板を、粘着剤を介して貼り付けた。さらにその上に光拡散膜（ルミスティ、住友化学（株）製）を貼り付けた。

作製した反射型液晶表示装置に 55Hz の矩形波電圧を印加した。黒表示 0.8V 、白表示 2.0V として目視で評価を行ったところ、白表示においても、黒表示においても、色味がなく、ニュートラルグレイが表示されていることが確認できた。

次に測定器（EZcontrast160D、Eldim社製）を用いて反射輝度のコントラスト比を測定したところ、正面からのコントラスト比が8であり、コントラスト比3となる視野角は、上下 120° 以上、左右 120° 以上であった。

[実施例13]

(TN反射型液晶表示装置の作製)

実施例9で作製したTN型液晶セルのITO透明電極を設けたガラス基板の側に、上記の楕円偏光板のポリカーボネートがくるように接着剤を介して貼り付けた。偏光膜の透過軸と $\lambda/4$ 板の遅相軸との角度は 45° となるように配置した。

作製した反射型液晶表示装置に、 1kHz の矩形波電圧を印加した。白表示 1.5V 、黒表示 4.5V として目視で評価を行ったところ、白表示ではやや青緑色味が、黒表示においてはやや紫色味が認められた。

次に、測定機（EZcontrast160D、Eldim社製）を用いて反射輝度のコントラスト比を測定したところ、正面からのコントラスト比が10であり、コントラスト比3となる視野角は、上下 100° 、左右 80° であった。

[実施例14]

(ポリマーフィルムの作製)

室温において、セルローストリアセテート（平均酢化度60.3%、粘度平均重合度320、含水率0.4質量%、メチレンクロライド溶液中6質量%の粘度305 mPa・s、平均粒子径1.5 mmであって標準偏差0.5 mmである粉体）20質量部、酢酸メチル58質量部、アセトン5質量部、メタノール5質量部、エタノール5質量部、ブタノール5質量部、ジトリメチロールプロパンテトラアセテート（可塑剤）1.2質量部、トリフェニルフォスフェート（可塑剤）1.2質量部、2,4-ビス-（*n*-オクチルチオ）-6-（4-ヒドロキシ-3,5-ジ-*tert*-ブチルアニリノ）-1,3,5-トリアジン（UV剤）0.2質量部、2-（2'-ヒドロキシ-3',5'-ジ-*tert*-ブチルフェニル）-5-クロルベンゾトリアゾール（UV剤）0.2質量部、2-（2'-ヒドロキシ-3',5'-ジ-*tert*-アミルフェニル）-5-クロルベンゾトリアゾール（UV剤）0.2質量部、 $C_{12}H_{25}OCH_2CH_2O-P(=O)-(OK)_2$ （剥離剤）0.02質量部、クエン酸（剥離剤）0.02質量部、粒径20 nmのシリカ微粒子（モース硬度：約7）0.05質量部を混合して溶液を調製した。

なお、ここで使用したセルローストリアセテートは、残存酢酸量が0.01質量%以下であり、Caが0.05質量%、Mgは0.007質量%であり、さらにFeは5 ppmであった。また6位アセチル基は0.95であり全アセチル中の32.2%であった。また、アセトン抽出分は11質量%、重量平均分子量と数平均分子量の比は0.5であり、分布の均一なものであった。また、イエローネスインデックスは0.3であり、ヘイズは0.08、透明度は93.5%であり、T_gは160℃、結晶化発熱量は6.2 J/gであった。

別のミキシングタンクに、レターデーション上昇剤（41-trans）2.25質量部、メチレンクロライド16.0質量部およびメタノール1.39質量部を投入し、加熱しながら攪拌して、レターデーション上昇剤溶液を調製した。

セルロースアセテート溶液にレターデーション上昇剤溶液を全て投入し、充分に攪拌してドープを調製した。

得られたドープを、流延後の乾燥ゾーンに多段ロール延伸ゾーンを設けたバン

ド流延機を用いて流延・一軸延伸をおこなった。延伸ゾーン直前のフィルムの残留溶剂量は2.0%であった。延伸ゾーンは温度を均一に保つためケーシングで覆い、膜面上で130℃になるようにした。また、フィルムの延伸温度はロールの温度、ロール間に設けた赤外線ヒータで調節した。延伸倍率はロールの回転速度を調節することにより1.31倍とした。延伸後のフィルムは室温まで徐冷し、巻き取った。

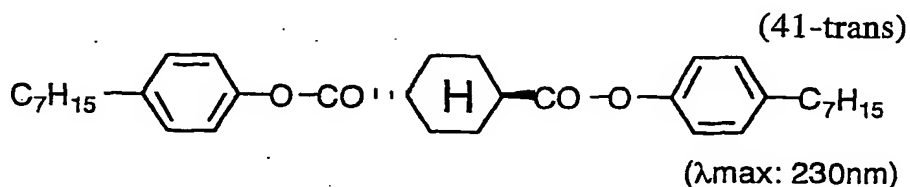
得られたポリマーフィルムの厚さは、120.1 μm であり、エリプソメーター(M-150、日本分光(株)製)を用いて、波長450nm、550nmおよび590nmにおけるレターデーション値(R_e)を測定したところ、それぞれ、127.0nm、140.3nmおよび144.2nmであった。従って、このセルロースアセテートフィルムは、広い波長領域で $\lambda/4$ を達成していた。

さらに、アッペ屈折率計による屈折率測定と、レターデーションの角度依存性の測定から、波長550nmにおける面内の遅相軸方向の屈折率 n_x 、面内の遅相軸に垂直な方向の屈折率 n_y および厚み方向の屈折率 n_z を求め、 $(n_x - n_z) / (n_x - n_y)$ の値を計算したところ、1.48であった。

[実施例15]

($\lambda/4$ 板の作製)

室温において、平均酢化度59.5%のセルロースエステル100質量部、トリフェニルホスフェート7.8質量部、ビフェニルジフェニルホスフェート3.9質量部、下記のレターデーション上昇剤(41-trans)1.32質量部、メチレンクロリド587.69質量部、およびメタノール50.85質量部を混合して、溶液(ドープ)を調製した。



得られたドープを、製膜バンド上に流延し、室温で1分間乾燥後、45℃で5分間乾燥させた。乾燥後のフィルムの溶剤残留量は、30質量%であった。セルロースエステルフィルムをバンドから剥離し、120℃で10分間乾燥した後、130℃で流延方向とは平行な方向に、実倍で1.34倍に延伸した。延伸方向と垂直な方向は、自由に収縮できるようにした。延伸後、120℃で30分間乾燥した後、延伸フィルムを取り出した。延伸後の溶剤残留量は、0.1質量%であった。

得られたポリマーフィルムフィルムの厚さは、113 μm であり、エリプソメーター（M-150、日本分光（株）製）を用いて、波長450 nm、550 nmおよび590 nmにおけるレターデーション値（Re）を測定したところ、それぞれ、125.2 nm、137.8 nmおよび141.1 nmであった。従って、このセルロースエステルフィルムは、広い波長領域で $\lambda/4$ を達成していた。

さらに、アッベ屈折率計による屈折率測定と、レターデーションの角度依存性の測定から、波長550 nmにおける面内の遅相軸方向の屈折率 n_x 、面内の遅相軸に垂直な方向の屈折率 n_y および厚み方向の屈折率 n_z を求め、 $(n_x - n_z) / (n_x - n_y)$ の値を計算したところ、1.48であった。

（ $\lambda/4$ 板への透明導電膜形成）

上記フィルムを巻取り型のスパッタリング装置にセットして、真空槽を1.2 mPaの圧力まで排気した後、Ar + O₂ 混合ガス（O₂ = 1.5%）を導入し、圧力を0.25 Paに調整した後、基板温度を25℃、投入電力密度1 W/cm²にて、DCスパッタリングを行ない、厚み42 nmのIn₂O₃系の透明導電膜を形成した。

このようにして得られたフィルムの透明導電膜側の表面抵抗率を、4端子法にて測定した結果、206 Ω/\square であり、光の透過率は88%であった。

得られた透明導電膜付きフィルムについてエリプソメーター（M-150、日本分光（株）製）を用いて、波長450 nm、550 nm、および590 nmにおけるレターデーション値（Re）を測定したところ、それぞれ、125.2 nm

、137.8 nm、141.1 nmであった。したがって、このセルロースエステルフィルムは広い波長領域で $\lambda/4$ を達成していた。

さらに、アッベ屈折率計による屈折率測定と、レターデーションの角度依存性の測定から、波長550 nmにおける面内の遅相軸方向の屈折率 n_x 、面内の遅相軸に垂直な方向の屈折率 n_y および厚み方向の屈折率 n_z を求め、 $(n_x - n_z) / (n_x - n_y)$ の値を計算したところ、1.48であった。

(タッチパネルの作製)

片面の表面抵抗率が $800 \Omega/\square$ の透明導電膜(ITO)が付いた0.7 mmの厚みのガラス板を用意し、表面に1 mmピッチのドットスペーサと両端部に銀電極を印刷した。また、得られた透明導電膜付き $\lambda/4$ 板の両端に銀電極を印刷し、それぞれ、上記透明導電ガラス板と、透明導電膜同士が対向するように接着し、同時にフレキシブル電極を取り付けた。この際、両基板の周囲に $100 \mu\text{m}$ 厚の絶縁性貼り合せ剤を挟んだ。このようにして作製したタッチパネルの $\lambda/4$ 板の側に、AR処理された偏光板を貼り付けた。 $\lambda/4$ の延伸方向(遅相軸方向と平行)と偏光板の透過軸方向とのなす角は 45° とした。このようにして透明導電膜付き $\lambda/4$ 板を用いたタッチパネルを作製した。

(タッチパネル付き反射型液晶表示装置の作製)

TN型液晶セルを使用した、タッチパネル付き反射型液晶表示装置(パワーザウルスMI-C1、シャープ(株)製)に設けられているタッチパネル部を取り外し、偏光板と位相差板を剥がし、上記で作製したタッチパネルを取り付けた。

作製した液晶表示装置について、測定機(EZ-Contrast160D、ELDIM社製)を用いて、コントラスト比を測定したところ、正面で10:1であった。また、上下左右でコントラスト比2:1が得られる視野角を測定したところ、上下、左右ともに 120° 以上であった。作製した液晶表示装置は白表示においても黒表示においても色味がなくニュートラルグレーが表示されていることが確認できた。また、表面反射率は9.5%であり、外光の映り込みが少ないため視認性に優れていた。タッチパネルとしての入力性能は良好であった。

[実施例 16]

(λ/4板の作製)

室温において、セルローストリアセテート（置換度 2.82、粘度平均重合度 320、含水率 0.4 質量%、メチレンクロライド溶液中 6 質量%の粘度：305 mPa・s、平均粒子径 1.5 μm であって標準偏差 0.5 μm である粉体）20 質量部、酢酸メチル 58 質量部、アセトン 5 質量部、メタノール 5 質量部、エタノール 5 質量部、ブタノール 5 質量部、ジトリメチロールプロパンテトラアセテート（可塑剤）1.2 質量部、トリフェニルフォスフェート（可塑剤）1.2 質量部、レターデーション上昇剤（41-trans）1.00 質量部、 $C_{12}H_{25}OCH_2CH_2O-P(=O)(OK)_2$ （剥離剤）0.02 質量部、クエン酸（剥離剤）0.02 質量部、微粒子（シリカ（粒径 20 nm）、モース硬度：約 7）0.05 質量部を混合して溶液を調製した。

なお、ここで使用したセルローストリアセテートは、残存酢酸量が 0.01 質量%以下であり、Ca が 0.05 質量%、Mg は 0.007 質量%であり、さらに Fe は 5 ppm であった。また 6 位アセチル基は 0.95 であり全アセチル中の 32.2% であった。また、アセトン抽出分は 11 質量%、重量平均分子量と数平均分子量の比は 0.5 であり、分布の均一なものであった。また、イエローネスインデックスは 0.3 であり、ヘイズは 0.08、透明度は 93.5% であり、Tg は 160°C、結晶化発熱量は 6.2 J/g であった。

得られたポリマーフィルムフィルムの厚さは、121.7 μm であり、エリプソメーター（M-150、日本分光（株）製）を用いて、波長 450 nm、550 nm および 590 nm におけるレターデーション値（Re）を測定したところ、それぞれ、126.2 nm、138.8 nm および 142.1 nm であった。従って、このセルロースエステルフィルムは、広い波長領域で λ/4 を達成していた。

さらに、アッベ屈折率計による屈折率測定と、レターデーションの角度依存性の測定から、波長 550 nm における面内の遅相軸方向の屈折率 n_x 、面内の遅相軸に垂直な方向の屈折率 n_y および厚み方向の屈折率 n_z を求め、($n_x - n$

$z) / (n_x - n_y)$ の値を計算したところ、1.50であった。

($\lambda/4$ 板への透明導電膜形成)

実施例15と同様に、上記 $\lambda/4$ 板上にスパッタを行ない、厚み50nmの In_2O_3 系の透明導電膜を形成した。

このようにして得られたフィルムの透明導電膜側の表面抵抗率を、4端子法にて測定した結果、 $226\ \Omega/\square$ であり、光の透過率は87%であった。

得られた透明導電膜付きフィルムについてエリプソメータ(M-150、日本分光(株)製)を用いて、波長450nm、550nm、および590nmにおけるレターデーション値(R_e)を測定したところ、それぞれ、126.2nm、138.8nm、142.1nmであった。したがって、このセルロースエステルフィルムは広い波長領域で $\lambda/4$ を達成していた。

さらに、アッペ屈折率計による屈折率測定と、レターデーションの角度依存性の測定から、波長550nmにおける面内の遅相軸方向の屈折率 n_x 、面内の遅相軸に垂直な方向の屈折率 n_y および厚み方向の屈折率 n_z を求め、 $(n_x - n_z) / (n_x - n_y)$ の値を計算したところ、1.50であった。

(タッチパネルの作製)

片面の表面抵抗率が $800\ \Omega/\square$ の透明導電膜(ITO)が付いた0.7mmの厚みのガラス板を用意し、表面に1mmピッチのドットスペーサと両端部に銀電極を印刷した。また、得られた透明導電膜付き $\lambda/4$ 板の両端に銀電極を印刷し、それぞれ、上記透明導電ガラス板と、透明導電膜同士が対向するように接着し、同時にフレキシブル電極を取り付けた。この際、両基板の周囲に100 μm 厚の絶縁性貼り合せ剤を挟んだ。このようにして作製したタッチパネルの $\lambda/4$ 板の側に、AR処理された偏光板を貼り付けた。 $\lambda/4$ 板の延伸方向(遅相軸方向と平行)と偏光板の透過軸方向とのなす角は45°とした。このようにして透明導電膜付き $\lambda/4$ 板を用いたタッチパネルを作製した。

(タッチパネル付き反射型液晶表示装置の作製)

TN型液晶セルを使用した、タッチパネル付き反射型液晶表示装置（パワーザウルスMI-C1、シャープ（株）製）に設けられているタッチパネル部を取り外し、偏光板と位相差板を剥がし、上記で作製したタッチパネルを取り付けた。

作製した液晶表示装置について、測定機（EZ-Contrast160D、ELDIM社製）を用いて、コントラスト比を測定したところ、正面で10：1であった。また、上下左右でコントラスト比2：1が得られる視野角を測定したところ、上下、左右ともに120°以上であった。作製した液晶表示装置は白表示においても黒表示においても色味がなくニュートラルグレーが表示されていることが確認できた。また、表面反射率は9.1%であり外光の映り込みが少ないため視認性に優れていた。タッチパネルとしての入力性能は良好であった。

[実施例17]

($\lambda/4$ 板の作製)

実施例15と同様にして $\lambda/4$ 板を作製した。

し
(透明導電膜の塗設)

1) 銀パラジウムコロイド分散液の調製

30%硫酸鉄(II) $\text{FeSO}_4 \cdot 7\text{H}_2\text{O}$ 、40%のクエン酸を調整、混合し、20℃に保持、攪拌しながらこれに10%の硝酸銀と硝酸パラジウム（モル比9/1に混合したもの）溶液を200ml/minの速度で添加混合し、その後生成した遠心分離により水洗を繰り返し、最終的に3質量%になるように純水を加え、銀パラジウムコロイド分散液を調整した。得られた銀コロイド粒子の粒径は、TEM観察の結果、粒径は約9～12nmであった。ICPによる測定の結果、銀とパラジウムの比は9/1の仕込み比と同一であった。

2) 銀コロイド塗布液の調製

前記銀コロイド分散液100gにi-プロピルアルコールを加え、超音波分散し孔径1 μm のポリプロピレン製フィルターで濾過して塗布液を調整した。

3) オーバーコート用塗布液L-1の調製

ジペンタエリスリトールペンタアクリレートとジペンタエリスリトールヘキサアクリレートの混合物 (DPHA、日本化薬 (株) 製) 2 g と光重合開始剤 (イルガキュア 907、チバガイギー社製) 80 mg および光増感剤 (カヤキュア DETX、日本化薬 (株) 製) 30 mg をメチルイソプロピルケトン 38 g、2-ブタノール 38 g、メタノール 19 g の混合液に加えて溶解した。混合物を 30 分間攪拌した後、孔径 1 μm のポリプロピレン製フィルターで濾過してオーバーコート用塗布液を調製した。

4) 透明導電性積層の形成

$\lambda/4$ 板にコロナ処理を施した後、上記銀コロイド塗布液をワイヤーバーで塗布量が 70 mg/m^2 になるように塗布し、40°C で乾燥した。この銀コロイド塗布面に、ポンプで送液した水をスプレーでかけ、エアナイフで過剰の水を除去した後、120°C の加熱ゾーンで搬送しながら、5 分の処理を行った。次いで、オーバーコート用塗布液 L-1 を膜厚 80 nm になるように塗布、乾燥し、120°C で 2 時間熱処理した後、紫外線を照射し、塗布膜を硬化させた。

このようにして得られたフィルムの透明導電膜側の表面抵抗率を、4 端子法にて測定した結果、200 Ω/\square であり、光の透過率は、71% であった。

(タッチパネルの作製)

片面の表面抵抗率が 5 Ω/\square 、もう片面の表面抵抗率が 400 Ω/\square の透明導電膜 (ITO) が付いた 0.7 mm 厚みのガラス板を用意した。表面抵抗率 5 Ω/\square の面にポリイミド配向膜 (SE-7992、日産化学 (株) 製) を形成し、ラビング処理を行った。もう一方の面 (表面抵抗率 400 Ω/\square) には、1 mm ピッチのドットスペーサと両端部に銀電極を印刷した。得られた透明導電膜付き $\lambda/4$ 板の両端に銀電極を印刷し、それぞれ、上記透明導電ガラス板と、透明導電膜同士が対向するように接着した。この際、両基板の周囲に 100 μm 厚の絶縁性貼り合せ剤を挟んだ。このようにして作製したタッチパネルの $\lambda/4$ 板の側に、AR 処理された偏光板を貼り付けた。 $\lambda/4$ 板の延伸方向 (遅相軸方向と平

行)と偏光板の透過軸方向とのなす角は 45° とした。このようにしてタッチパネルを作製した。

(反射型液晶表示装置の作製)

微細な凹凸が形成されたアルミニウム反射電極を設けたガラス基板を用意した。このガラス基板の電極側に、ポリイミド配向膜 (SE-7992、日産化学 (株) 製) を形成し、ラビング処理を行った。 $3.4\mu\text{m}$ のスペーサーを介して、上記タッチパネルと、反射電極を設けたガラス基板を、配向膜が向かい合うように重ねた。二つの配向膜のラビング方向は、 110° の角度で交差するように、基板の向きを調節した。基板の間に、液晶 (MLC-6252、メルク社製) を注入し、液晶層を形成した。このようにして、ツイスト角が 70° 、 $\Delta n d$ の値が 269nm のTN型液晶セルを作製した。このようにして、タッチパネルを用いた反射型液晶表示装置を作製した。

作製した反射型液晶表示装置に 1kHz の矩形波電圧を印加した。白表示 1.5V 、黒表示 4.5V として目視で評価を行ったところ、白表示においても、黒表示においても、反射型液晶表示装置は、色味がなく、ニュートラルグレイが表示されていることが確認できた。次に、測定機 (EZ contrast 160D、Eldim社製) を用いて反射輝度のコントラスト比を測定したところ、正面からのコントラスト比が25であり、コントラスト比2となる視野角は、上下 120° 以上、左右 120° 以上であった。

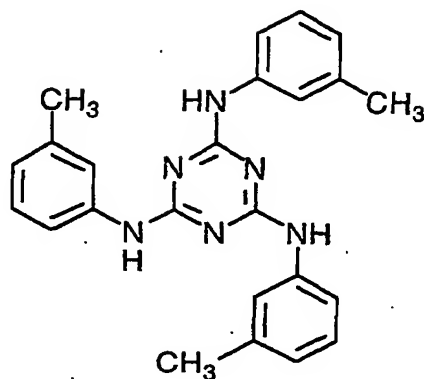
作製したタッチパネルが良好に動作することを確認した。また、表面反射率は8.9%であり外光の映り込みが少ないため視認性に優れていた。

[比較例5]

($\lambda/4$ 板の作製)

室温において、平均酢化度59.7%のセルロースアセテート120質量部、下記レターデーション上昇剤1.2質量部、トリフェニレンホスフェート9.36質量部、ビフェニルジフェニルホスフェート4.68質量部、トリベンジルアミン2.0質量部、メチレンクロリド538.2質量部、メタノール46.8質

量部を混合して溶液（ドープ）を調整した。



得られたドープを、ステンレス製バンド上に流延し、自己支持性を持つまでフィルムを乾燥した後バンドから剥ぎ取った。その時の残留揮発分は30質量%であった。その後、フィルムを120℃で15分乾燥し、残留揮発分を2質量%以下にした後、130℃で流延方向と平行な方向に延伸した。延伸方向と垂直な方向は、自由に収縮できるようにした。延伸後、そのままの状態120℃で30分間乾燥した後、延伸フィルムを取り出した。延伸後の溶剤残留量は0.1質量%であった。このようにして得られたフィルムの厚さは112 μm であった。

得られたセルロースアセレートフィルム（ $\lambda/4$ 板）について、エリプソメーター（M-150、日本分光（株）製）を用いて、波長450 nm、550 nm、および590 nmにおけるレターデーション値（Re）を測定したところ、それぞれ、71.3 nm、78.1 nm、80.0 nmであった。

さらに、アッベ屈折率計による屈折率測定と、レターデーションの角度依存性の測定から、波長550 nmにおける面内の遅相軸方向の屈折率 n_x 、面内の遅相軸に垂直な方向の屈折率 n_y および厚み方向の屈折率 n_z を求め、 $(n_x - n_z) / (n_x - n_y)$ の値を計算したところ、1.50であった。

($\lambda/4$ 板への透明導電膜形成)

実施例15と同様に、上記 $\lambda/4$ 板上にスパッタを行ない、厚み40nmの In_2O_3 系の透明導電膜を形成した。

このようにして得られたフィルムの透明導電膜側の表面抵抗率を、4端子法にて測定した結果、 $204\Omega/\square$ であり、光の透過率は85%であった。

(タッチパネルの作製)

片面の表面抵抗率が $800\Omega/\square$ の透明導電膜(ITO)が付いた0.7mmの厚みのガラス板を用意し、表面に1mmピッチのドットスペーサと両端部に銀電極を印刷した。また、得られた透明導電膜付き $\lambda/4$ 板の両端に銀電極を印刷し、それぞれ、上記透明導電ガラス板と、透明導電膜同士が対向するように接着し、同時にフレキシブル電極を取り付けた。この際、両基板の周囲に $100\mu\text{m}$ 厚の絶縁性貼り合せ剤を挟んだ。このようにして作製したタッチパネルの $\lambda/4$ 板の側に、AR処理された偏光板を貼り付けた。 $\lambda/4$ 板の延伸方向(遅相軸方向と平行)と偏光板の透過軸方向とのなす角は 45° とした。このようにして透明導電膜付き $\lambda/4$ 板を用いたタッチパネルを作製した。

(タッチパネル付き反射型液晶表示装置の作製)

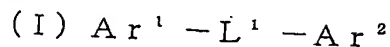
TN型液晶セルを使用した、タッチパネル付き反射型液晶表示装置(パワーザウルスMI-C1、シャープ(株)製)に設けられているタッチパネル部を取り外し、偏光板と位相差板を剥がし、上記で作製したタッチパネルを取り付けた。

作製した液晶表示装置について、測定機(EZ-Contrast160D、ELDIM社製)を用いて、コントラスト比を測定したところ、正面で5:1であった。また、上下左右でコントラスト比2:1が得られる視野角を測定したところ、上下、左右ともに 60° 程度であった。白表示は青味があり、黒表示は赤味がありニュートラルグレーではなかった。また、タッチパネルとしては良好に動作しているものの、表面反射率が19.1%と大きく外光の映り込みがあり視認性は実施例よりも悪かった。

請 求 の 範 囲

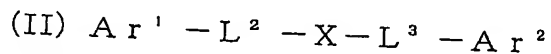
1. 溶液の紫外線吸収スペクトルにおいて最大吸収波長 (λ_{\max}) が 250 nm より短波長である棒状化合物を含み、波長 450 nm で測定したレターデーション値 (R_{e450}) が 60 乃至 135 nm であり、波長 590 nm で測定したレターデーション値 (R_{e590}) が 100 乃至 170 nm であり、 $R_{e590} - R_{e450} \geq 2\text{ nm}$ の関係を満足する一枚のポリマーフィルムからなる位相差板。
2. ポリマーフィルムが、セルロースエステルからなる請求の範囲第1項に記載の位相差板。
3. セルロースエステルが、酢化度が 45.0 乃至 62.5% のセルロースアセテートである請求の範囲第2項に記載の位相差板。
4. ポリマーフィルムが、 3 乃至 100% の延伸倍率で延伸されたフィルムである請求の範囲第1項に記載の位相差板。
5. ポリマーフィルムが、面内の遅相軸方向の屈折率 n_x 、面内の遅相軸に垂直な方向の屈折率 n_y および厚み方向の屈折率 n_z が、 $1 \leq (n_x - n_z) / (n_x - n_y) \leq 2$ の関係を満足する請求の範囲第1項に記載の位相差板。
6. 棒状化合物が、直線的な分子構造を有する請求の範囲第1項に記載の位相差板。
7. 棒状化合物が、液晶性を有する請求の範囲第1項に記載の位相差板。
8. ポリマーフィルム 100 質量部当たり、棒状化合物を 0.01 乃至 20 質量部含む請求の範囲第1項に記載の位相差板。

9. 棒状化合物が、下記式 (I) で表される請求の範囲第 1 項に記載の位相差板:



[式中、 Ar^1 および Ar^2 は、それぞれ独立に、芳香族基であり;そして、 L^1 は、アルキレン基、アルケニレン基、アルキニレン基、二価の飽和ヘテロ環基、 $-\text{O}-$ 、 $-\text{CO}-$ およびそれらの組み合わせからなる群より選ばれる二価の連結基である]。

10. 棒状化合物が、下記式 (II) で表される請求の範囲第 9 項に記載の位相差板:



[式中、 Ar^1 および Ar^2 は、それぞれ独立に、芳香族基であり; L^2 および L^3 は、それぞれ独立に、アルキレン基、 $-\text{O}-$ 、 $-\text{CO}-$ およびそれらの組み合わせからなる群より選ばれる二価の連結基であり;そして、 X は、1, 4-シクロヘキシレン、ビニレンまたはエチニレンである]。

11. 溶液の紫外線吸収スペクトルにおいて最大吸収波長 (λ_{max}) が 250 nm より短波長である棒状化合物を含み、波長 450 nm で測定したレターデーション値 ($\text{Re}450$) が 120 乃至 270 nm であり、波長 590 nm で測定したレターデーション値 ($\text{Re}590$) が 200 乃至 340 nm であり、 $\text{Re}590 - \text{Re}450 \geq 2 \text{ nm}$ の関係を満足する一枚のポリマーフィルムからなる位相差板。

12. 溶液の紫外線吸収スペクトルにおいて最大吸収波長 (λ_{max}) が 250 nm より短波長である棒状化合物を含み、波長 450 nm で測定したレターデーション値 ($\text{Re}450$) が 60 乃至 135 nm であり、波長 590 nm で測定したレターデーション値 ($\text{Re}590$) が 100 乃至 170 nm であり、 $\text{Re}590 - \text{Re}450 \geq 2 \text{ nm}$ の関係を満足する一枚のポリマーフィルムからなる位相差板。

板と偏光膜とが、位相差板の面内の遅相軸と偏光膜の偏光軸との角度が実質的に 45° になるように積層されている円偏光板。

13. 液晶セル、その片側に配置された一枚の円偏光板、および反射板からなる反射型液晶表示装置であって、円偏光板が、請求の範囲第12項に記載の円偏光板であり、ポリマーフィルムが液晶セル側になるように配置されていることを特徴とする反射型液晶表示装置。

14. 少なくとも片面に透明導電膜が設けられた2枚の透明導電性基板が、透明導電膜同士が対向するように配置され、少なくとも一方の透明導電性基板が $\lambda/4$ 板であるか、あるいは少なくとも一方の透明導電性基板の表面に $\lambda/4$ 板が積層されているタッチパネルであって、 $\lambda/4$ 板が、波長 450 nm で測定したレターデーション値 (R_{e450}) が 60 乃至 135 nm であり、かつ波長 590 nm で測定したレターデーション値 (R_{e590}) が 100 乃至 170 nm であり、 $R_{e590} - R_{e450} \geq 2\text{ nm}$ の関係を満足し、さらに溶液の紫外線吸収スペクトルにおいて最大吸収波長 (λ_{max}) が 250 nm より短波長である棒状化合物を含む一枚のポリマーフィルムからなることを特徴とするタッチパネル。

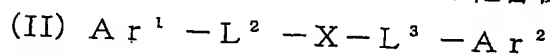
15. 透明導電膜の表面抵抗率が、 $10^4\ \Omega/\square$ 以下である請求の範囲第14項に記載のタッチパネル。

16. ポリマーフィルムにさらに偏光膜が積層されており、ポリマーフィルムの面内の遅相軸と偏光膜の偏光軸との角度が実質的に 45° になるように配置されている請求の範囲第14項に記載のタッチパネル。

17. タッチパネルおよび反射型液晶セルを備えた反射型液晶表示装置であって、タッチパネルが、請求の範囲第14項に記載のタッチパネルであることを特徴とする反射型液晶表示装置。

18. タッチパネルと反射型液晶セルとが一枚の基板を共有しており、共有する基板の両面に透明電極層が設けられている請求の範囲第17項に記載の反射型液晶表示装置。

19. 下記式 (II) で表される化合物を含むセルロースエステルフィルム：



[式中、 Ar^1 および Ar^2 は、それぞれ独立に、芳香族基であり； L^2 および L^3 は、それぞれ独立に、アルキレン基、 $-\text{O}-$ 、 $-\text{CO}-$ およびそれらの組み合わせからなる群より選ばれる二価の連結基であり；そして、 X は、1, 4-シクロヘキシレン、ビニレンまたはエチニレンである]。

20. 式 (II) で表される化合物が、液晶性を有する請求の範囲第19項に記載のセルロースエステルフィルム。

図 1

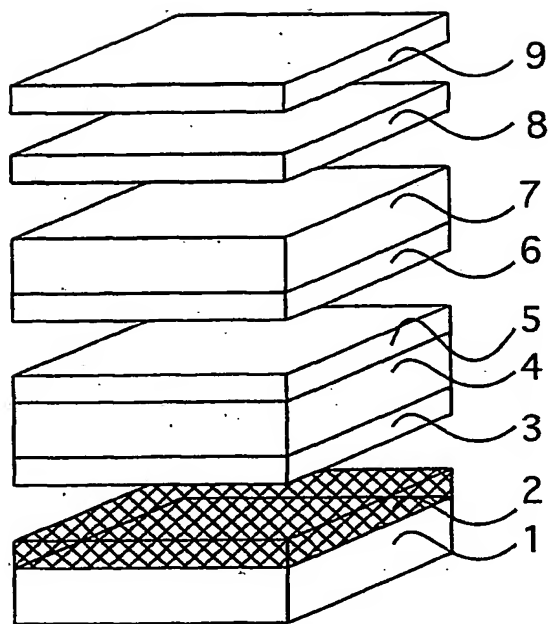


図 2

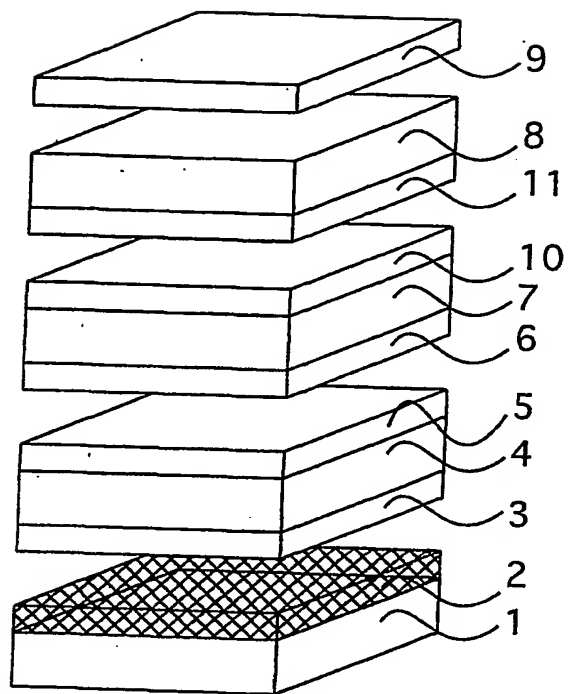
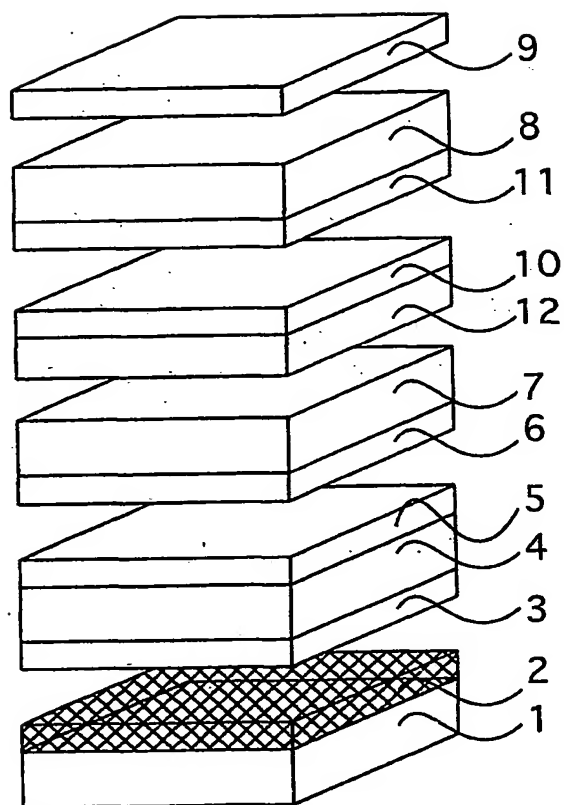


図 3



INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP02/02411

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER

Int.Cl⁷ G02B5/30, G02F1/13363, C08L1/10, C08J5/18//C08L1:10

According to International Patent Classification (IPC) or to both national classification and IPC

B. FIELDS SEARCHED

Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols)

Int.Cl⁷ G02B5/30, G02F1/13363, C08L1/10, C08J5/18//C08L1:10

Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched

Jitsuyo Shinan Koho	1926-1996	Toroku Jitsuyo Shinan Koho	1994-2002
Kokai Jitsuyo Shinan Koho	1971-2002	Jitsuyo Shinan Toroku Koho	1996-2002

Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practicable, search terms used)

Caplus (STN)

C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
Y A	JP 2000-111914 A (Fuji Photo Film Co., Ltd.), 21 April, 2000 (21.04.00), Full text; all drawings (Family: none)	1-9, 11-18 10, 19-20
X Y A	WO 00/65384 A1 (Fuji Photo Film Co., Ltd.), 02 November, 2000 (02.11.00), Full text; all drawings & AU 200038418 A & EP 1182470 A1	1-9, 11-13 14-18 10, 19-20
P, X P, A	JP 2002-99388 A (Fuji Photo Film Co., Ltd.), 05 April, 2002 (05.04.02), Full text; all drawings (Family: none)	1-9, 11-18 10, 19-20

☒ Further documents are listed in the continuation of Box C.

☐ See patent family annex.

* Special categories of cited documents:	"T" later document published after the international filing date or priority date and not in conflict with the application but cited to
"A" document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance	understand the principle or theory underlying the invention
"E" earlier document but published on or after the international filing date	document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered novel or cannot be considered to involve an inventive step when the document is taken alone
"L" document which may throw doubts on priority claim(s) or which is cited to establish the publication date of another citation or other special reason (as specified)	"Y" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered to involve an inventive step when the document is combined with one or more other such documents, such combination being obvious to a person skilled in the art
"O" document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means	"&" document member of the same patent family
"P" document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed	

Date of the actual completion of the international search
19 June, 2002 (19.06.02)

Date of mailing of the international search report
09 July, 2002 (09.07.02)

Name and mailing address of the ISA/
Japanese Patent Office

Authorized officer

Facsimile No.

Telephone No.

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP02/02411

C (Continuation). DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
P, X P, Y P, A	JP 2001-98086 A (Fuji Photo Film Co., Ltd.), 10 April, 2001 (10.04.01), Full text; all drawings (Family: none)	1-9, 11 12-18 10, 19-20
A	JP 2000-137116 A (Teijin Ltd.), 16 May, 2000 (16.05.00), Full text; all drawings (Family: none)	1-18
P, A	JP 2001-154018 A (Konica Corp.), 08 June, 2001 (08.06.01), Full text (Family: none)	1-20
P, A	JP 2001-154194 A (Konica Corp.), 08 June, 2001 (08.06.01), Full text (Family: none)	1-20
A	JP 2000-304932 A (Fuji Photo Film Co., Ltd.), 02 November, 2000 (02.11.00), Full text; all drawings & WO 00/49430 A1 & AU 200023262 A & EP 1156349 A & KR 2001102246 A & US 6380996 B1	1-20
A	EP 982621 A2 (Nippon Mitsubishi Oil Corp.), 01 March, 2000 (01.03.00), Full text; all drawings & JP 2000-66192 A & US 6294229 B1	19-20
A	JP 11-80090 A (Dainippon Ink And Chemicals, Inc.), 23 March, 1999 (23.03.99), Full text (Family: none)	19-20
A	DE 19941567 A1 (Merck Patent GmbH), 20 April, 2000 (20.04.00), Full text (Family: none)	19-20

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP02/02411

Box I Observations where certain claims were found unsearchable (Continuation of item 1 of first sheet)

This international search report has not been established in respect of certain claims under Article 17(2)(a) for the following reasons:

1. ☐ Claims Nos.:
because they relate to subject matter not required to be searched by this Authority, namely:
2. ☐ Claims Nos.:
because they relate to parts of the international application that do not comply with the prescribed requirements to such an extent that no meaningful international search can be carried out, specifically:
3. ☐ Claims Nos.:
because they are dependent claims and are not drafted in accordance with the second and third sentences of Rule 6.4(a).

Box II Observations where unity of invention is lacking (Continuation of item 2 of first sheet)

This International Searching Authority found multiple inventions in this international application, as follows:
(see extra sheet)

1. ☒ As all required additional search fees were timely paid by the applicant, this international search report covers all searchable claims.
2. ☐ As all searchable claims could be searched without effort justifying an additional fee, this Authority did not invite payment of any additional fee.
3. ☐ As only some of the required additional search fees were timely paid by the applicant, this international search report covers only those claims for which fees were paid, specifically claims Nos.:
4. ☐ No required additional search fees were timely paid by the applicant. Consequently, this international search report is restricted to the invention first mentioned in the claims; it is covered by claims Nos.:

Remark on Protest ☐ The additional search fees were accompanied by the applicant's protest.
☒ No protest accompanied the payment of additional search fees.

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP02/02411

Continuation of Box No.II of continuation of first sheet(1)

1. The invention of claim 1 is the invention of a phase difference plate which comprises one sheet of polymer film containing a compound having a rod-shaped molecular structure and exhibiting a maximum absorption wave length (λ_{\max}) of less than 250 nm in an ultraviolet spectrum of its solution and exhibits a retardation value as measured at a wave length of 450 nm (Re 450) of 60 to 135 nm and a retardation value as measured at a wave length of 590 nm (Re 590) of 100 to 170 nm, wherein the relationship: $\text{Re } 590 - \text{Re } 450 \geq 2 \text{ nm}$ is satisfied.

And, claims 2 to 10 are inventions of dependent claims which are defined by referring to the preceding claim 1.

2. The invention of claim 11 is the invention of a phase difference plate which comprises one sheet of polymer film containing a compound having a rod-shaped molecular structure and exhibiting a maximum absorption wave length (λ_{\max}) of less than 250 nm in an ultraviolet spectrum of its solution and exhibits a retardation value as measured at a wave length of 450 nm (Re 450) of 120 to 270 nm and a retardation value as measured at a wave length of 590 nm (Re 590) of 200 to 340 nm, wherein the relationship: $\text{Re } 590 - \text{Re } 450 \geq 2 \text{ nm}$ is satisfied.

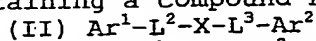
3. The invention of claim 12 is the invention of a circularly polarizing plate, wherein a phase difference plate which comprises one sheet of polymer film containing a compound having a rod-shaped molecular structure and exhibiting a maximum absorption wave length (λ_{\max}) of less than 250 nm in an ultraviolet spectrum of its solution and exhibits a retardation value as measured at a wave length of 450 nm (Re 450) of 60 to 135 nm and a retardation value as measured at a wave length of 590 nm (Re 590) of 100 to 170 nm, provided that the relationship: $\text{Re } 590 - \text{Re } 450 \geq 2 \text{ nm}$ is satisfied, and a polarizing film are laminated in a manner such that the angle between the in-plane phase delay axis of the phase difference plate and the polarization axis of the polarizing film is substantially 45° .

And, claim 13 is an invention of a dependent claim which is defined by referring to the preceding claim 12.

4. The invention of claim 14 is the invention of a touch panel in which two transparent conductive substrates having a transparent conductive film on at least one surface thereof are disposed so as for transparent conductive films to be opposed to each other and at least one transparent conductive substrate is a $\lambda/4$ plate or the surface of at least one transparent conductive substrate has a $\lambda/4$ plate laminated thereon, characterized in that the $\lambda/4$ plate exhibits a retardation value as measured at a wave length of 450 nm (Re 450) of 60 to 135 nm and a retardation value as measured at a wave length of 590 nm (Re 590) of 100 to 170 nm, provided that the relationship: $\text{Re } 590 - \text{Re } 450 \geq 2 \text{ nm}$ is satisfied, and comprises one sheet of polymer film containing a compound having a rod-shaped molecular structure and exhibiting a maximum absorption wave length (λ_{\max}) of less than 250 nm in an ultraviolet spectrum of its solution.

And, claims 15 to 18 are inventions of dependent claims which are defined by referring to the preceding claim 14.

5. The invention of claim 19 is the invention of a cellulose ester containing a compound represented by the following formula (II):



wherein Ar^1 and Ar^2 are each independently an aromatic group; L^2 and L^3 are each independently a divalent connecting group selected from the

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP02/02411

Continuation of Box No.II of continuation of first sheet(1)

thereof; group consisting of an alkylene group, -O-, -CO- and a combination and X is 1,4-cyclohexylene, vinylene or ethynylene.

And, claim 20 is an invention of a dependent claim which is defined by referring to the preceding claim 19.

There is no special technical feature of invention which is common between the groups of inventions (1., 2., 3. and 4.) and the group of 5.

Therefore, there is no common matter between the above groups of inventions which is considered to be a special technical feature in the meaning of PCT Rule 13.2, the second sentence, and thus the above groups of inventions are not a group of inventions which are so linked as to form a single general inventive concept.

Accordingly, the above groups of inventions do not comply with the requirement of unity of invention.

A. 発明の属する分野の分類 (国際特許分類 (IPC))

Int. Cl⁷ G02B 5/30, G02F 1/13363, C08L 1/10
C08J 5/18//C08L 1:10

B. 調査を行った分野

調査を行った最小限資料 (国際特許分類 (IPC))

Int. Cl⁷ G02B 5/30, G02F 1/13363, C08L 1/10
C08J 5/18//C08L 1:10

最小限資料以外の資料で調査を行った分野に含まれるもの

日本国実用新案公報 1926-1996年
日本国公開実用新案公報 1971-2002年
日本国登録実用新案公報 1994-2002年
日本国実用新案登録公報 1996-2002年

国際調査で利用した電子データベース (データベースの名称、調査に使用した用語)

CAPLUS (STN)

C. 関連すると認められる文献

引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求の範囲の番号
Y A	JP 2000-111914 A (富士写真フイルム株式会社) 2000.04.21 全文、全図 (ファミリーなし)	1-9, 11-18 10, 19-20
X Y A	WO 00/65384 A1 (富士写真フイルム株式会社) 2000.11.02 全文、全図 & AU 200038418 A & EP 1182470 A1	1-9, 11-13 14-18 10, 19-20
PX PA	JP 2002-99388 A (富士写真フイルム株式会社) 2002.04.05 全文、全図 (ファミリーなし)	1-9, 11-18 10, 19-20

☒ C欄の続きにも文献が列挙されている。

☐ パテントファミリーに関する別紙を参照。

* 引用文献のカテゴリー

「A」 特に関連のある文献ではなく、一般的技術水準を示すもの
「E」 国際出願日前の出願または特許であるが、国際出願日以後に公表されたもの
「L」 優先権主張に疑義を提起する文献又は他の文献の発行日若しくは他の特別な理由を確立するために引用する文献 (理由を付す)
「O」 口頭による開示、使用、展示等に言及する文献
「P」 国際出願日前で、かつ優先権の主張の基礎となる出願

の日の後に公表された文献
「T」 国際出願日又は優先日後に公表された文献であって、出願と矛盾するものではなく、発明の原理又は理論の理解のために引用するもの
「X」 特に関連のある文献であって、当該文献のみで発明の新規性又は進歩性がないと考えられるもの
「Y」 特に関連のある文献であって、当該文献と他の1以上の文献との、当業者にとって自明である組合せによって進歩性がないと考えられるもの
「&」 同一パテントファミリー文献

国際調査を完了した日

19.06.02

国際調査報告の発送日

09.07.02

国際調査機関の名称及びあて先

日本国特許庁 (ISA/JP)
郵便番号 100-8915
東京都千代田区霞が関三丁目4番3号

特許庁審査官 (権限のある職員)

森内 正明



2V

9.222

電話番号 03-3581-1101 内線 3269

C (続き) . 関連すると認められる文献		
引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求の範囲の番号
PX PY PA	JP 2001-98086 A (富士写真フイルム株式会社) 2001. 04. 10 全文、全図 (ファミリーなし)	1-9, 11 12-18 10, 19-20
A	JP 2000-137116 A (帝人株式会社) 2000. 05. 16、全文、全図 (ファミリーなし)	1-18
PA	JP 2001-154018 A (コニカ株式会社) 2001. 06. 08、全文 (ファミリーなし)	1-20
PA	JP 2001-154194 A (コニカ株式会社) 2001. 06. 08、全文 (ファミリーなし)	1-20
A	JP 2000-304932 A (富士写真フイルム株式会社) 2000. 11. 02 全文、全図 & WO 00/49430 A1 & AU 200023262 A & EP 1156349 A & KR 2001102246 A & US 6380996 B1	1-20
A	EP 982621 A2 (Nippon Mitsubishi Oil Corporation) 2000. 03. 01 全文、全図 & JP 2000-66192 A & US 6294229 B1	19-20
A	JP 11-80090 A (大日本インキ化学工業株式会社) 1999. 03. 23 全文、(ファミリーなし)	19-20
A	DE 19941567 A1 (Merck Patent GmbH) 2000. 04. 20、全文 (ファミリーなし)	19-20

第 I 欄 請求の範囲の一部の調査ができないときの意見 (第 1 ページの 2 の続き)

法第 8 条第 3 項 (PCT 17 条 (2) (a)) の規定により、この国際調査報告は次の理由により請求の範囲の一部について作成しなかった。

1. ☐ 請求の範囲 _____ は、この国際調査機関が調査をすることを要しない対象に係るものである。つまり、
2. ☐ 請求の範囲 _____ は、有意義な国際調査をすることができる程度まで所定の要件を満たしていない国際出願の部分に係るものである。つまり、
3. ☐ 請求の範囲 _____ は、従属請求の範囲であって PCT 規則 6.4(a) の第 2 文及び第 3 文の規定に従って記載されていない。

第 II 欄 発明の単一性が欠如しているときの意見 (第 1 ページの 3 の続き)

次に述べるようにこの国際出願に二以上の発明があるとこの国際調査機関は認めた。

特別ページ第 I I 欄の続きを参照

1. ☒ 出願人が必要な追加調査手数料をすべて期間内に納付したので、この国際調査報告は、すべての調査可能な請求の範囲について作成した。
2. ☐ 追加調査手数料を要求するまでもなく、すべての調査可能な請求の範囲について調査することができたので、追加調査手数料の納付を求めなかった。
3. ☐ 出願人が必要な追加調査手数料を一部のみしか期間内に納付しなかったため、この国際調査報告は、手数料の納付のあった次の請求の範囲のみについて作成した。
4. ☐ 出願人が必要な追加調査手数料を期間内に納付しなかったため、この国際調査報告は、請求の範囲の最初に記載されている発明に係る次の請求の範囲について作成した。

追加調査手数料の異議の申立てに関する注意

- ☐ 追加調査手数料の納付と共に出願人から異議申立てがあった。
- ☒ 追加調査手数料の納付と共に出願人から異議申立てがなかった。

第 I I 欄の続き

1. 請求の範囲 1 の発明は、溶液の紫外線吸収スペクトルにおいて最大吸収波長 (λ_{\max}) が 250 nm より短波長である棒状化合物を含み、波長 450 nm で測定したレターデーション値 (Re 450) が 60 乃至 135 nm であり、波長 590 nm で測定したレターデーション値 (Re 590) が 100 乃至 170 nm であり、 $\text{Re 590} - \text{Re 450} \geq 2 \text{ nm}$ の関係を満足する一枚のポリマーフィルムからなる位相差板の発明である。
また、請求の範囲 2-10 は、前記請求の範囲 1 を引用する従属形式の請求の範囲の発明である。
2. 請求の範囲 11 の発明は、溶液の紫外線吸収スペクトルにおいて最大吸収波長 (λ_{\max}) が 250 nm より短波長である棒状化合物を含み、波長 450 nm で測定したレターデーション値 (Re 450) が 120 乃至 270 nm であり、波長 590 nm で測定したレターデーション値 (Re 590) が 200 乃至 340 nm であり、 $\text{Re 590} - \text{Re 450} \geq 2 \text{ nm}$ の関係を満足する一枚のポリマーフィルムからなる位相差板の発明である。
3. 請求の範囲 12 の発明は、溶液の紫外線吸収スペクトルにおいて最大吸収波長 (λ_{\max}) が 250 nm より短波長である棒状化合物を含み、波長 450 nm で測定したレターデーション値 (Re 450) が 60 乃至 135 nm であり、波長 590 nm で測定したレターデーション値 (Re 590) が 100 乃至 170 nm であり、 $\text{Re 590} - \text{Re 450} \geq 2 \text{ nm}$ の関係を満足する一枚のポリマーフィルムからなる位相差板と偏光膜とが、位相差板の面内の遅相軸と偏光膜の偏光軸との角度が実質的に 45° になるように積層されている円偏光板の発明である。
また、請求の範囲 13 は、前記請求の範囲 12 を引用する従属形式の請求の範囲の発明である。
4. 請求の範囲 14 の発明は、少なくとも片面に透明導電膜が設けられた 2 枚の透明導電性基板が、透明導電膜同士が対向するように配置され、少なくとも一方の透明導電性基板が $\lambda/4$ 板であるか、あるいは少なくとも一方の透明導電性基板の表面が $\lambda/4$ 板が積層されているタッチパネルであって、 $\lambda/4$ 板が波長 450 nm で測定したレターデーション値 (Re 450) が 60 乃至 135 nm であり、波長 590 nm で測定したレターデーション値 (Re 590) が 100 乃至 170 nm であり、 $\text{Re 590} - \text{Re 450} \geq 2 \text{ nm}$ の関係を満足し、さらに、溶液の紫外線吸収スペクトルにおいて最大吸収波長 (λ_{\max}) が 250 nm より短波長である棒状化合物を含む一枚のポリマーフィルムからなることを特徴とするタッチパネルの発明である。
また、請求の範囲 15-18 は、前記請求の範囲 14 を引用する従属形式の請求の範囲の発明である。
5. 請求の範囲 19 の発明は、下記式 (II) で表される化合物を含むセルロースエステル
の発明である。
(II) $\text{Ar}^1 - \text{L}^2 - \text{X} - \text{L}^3 - \text{Ar}^2$
[式中、 Ar^1 および Ar^2 は、それぞれ独立に、芳香族基であり； L^2 および L^3 は、それぞれ独立に、アルキレン基、 $-\text{O}-$ 、 $-\text{CO}-$ およびそれらの組み合わせからなる群より選ばれる二価の連結基であり；そして、 X は 1, 4-シクロヘキシレン、ビニレンまたはエチレンである]。
また、請求の範囲 20 は、前記請求の範囲 19 を引用する従属形式の請求の範囲の発明である。

上記、発明の群（１．、２．、３．、４．）と５．の群の間では、発明の特別な技術的特徴として共通するものは存在していない。

よって、上記発明の群との間において、PCT規則１３．２、第２文の意味において特別の技術的特徴と考えられる共通事項は存在してなく、前記発明の群同士は、単一の一般的発明概念を形成する連関している一群の発明であるとはいえない。

したがって、前記発明の群同士は、単一性を満足する関係であるとはいえない。

THIS PAGE BLANK (USPTO)

**This Page is Inserted by IFW Indexing and Scanning
Operations and is not part of the Official Record**

BEST AVAILABLE IMAGES

Defective images within this document are accurate representations of the original documents submitted by the applicant.

Defects in the images include but are not limited to the items checked:

- ☐ BLACK BORDERS
- ☐ IMAGE CUT OFF AT TOP, BOTTOM OR SIDES
- ☒ FADED TEXT OR DRAWING
- ☒ BLURRED OR ILLEGIBLE TEXT OR DRAWING
- ☐ SKEWED/SLANTED IMAGES
- ☐ COLOR OR BLACK AND WHITE PHOTOGRAPHS
- ☐ GRAY SCALE DOCUMENTS
- ☒ LINES OR MARKS ON ORIGINAL DOCUMENT
- ☒ REFERENCE(S) OR EXHIBIT(S) SUBMITTED ARE POOR QUALITY
- ☐ OTHER: _____

IMAGES ARE BEST AVAILABLE COPY.

As rescanning these documents will not correct the image problems checked, please do not report these problems to the IFW Image Problem Mailbox.

THIS PAGE BLANK (USPTO)